

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP05/006712

International filing date: 30 March 2005 (30.03.2005)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2004-110166
Filing date: 02 April 2004 (02.04.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 12 May 2005 (12.05.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

日 本 国 特 許 庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日
Date of Application: 2 0 0 4 年 4 月 2 日

出 願 番 号
Application Number: 特 願 2 0 0 4 - 1 1 0 1 6 6

パリ条約による外国への出願
に用いる優先権の主張の基礎
となる出願の国コードと出願
番号

The country code and number
of your priority application,
to be used for filing abroad
under the Paris Convention, is

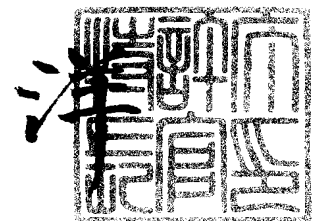
J P 2 0 0 4 - 1 1 0 1 6 6

出 願 人
Applicant(s): 日 産 自 動 車 株 式 会 社
ル ノー エス．ア．エス．ソシエテ パ アクション サン
プリフェ

2 0 0 5 年 4 月 2 0 日

特 許 庁 長 官
Commissioner,
Japan Patent Office

小 川



【書類名】 特許願
【整理番号】 NM03-01974
【提出日】 平成16年 4月 2日
【あて先】 特許庁長官殿
【国際特許分類】 H01M 8/04
【発明者】
 【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内
 【氏名】 上條 元久
【発明者】
 【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 日産自動車株式会社内
 【氏名】 三輪 博通
【発明者】
 【住所又は居所】 フランス国 エフー92100 ブーローニュ ビヤンクール
 ルノー エス.ア.エス.ソシエテ パ アクション サンプリ
 フェ 内
 【氏名】 ルーク ルーベラ
【特許出願人】
 【識別番号】 000003997
 【氏名又は名称】 日産自動車株式会社
【特許出願人】
 【識別番号】 302057052
 【氏名又は名称】 ルノー エス.ア.エス.ソシエテ パ アクション サンプリ
 フェ
【代理人】
 【識別番号】 100075513
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 後藤 政喜
【選任した代理人】
 【識別番号】 100084537
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 松田 嘉夫
【手数料の表示】
 【予納台帳番号】 019839
 【納付金額】 16,000円
【提出物件の目録】
 【物件名】 特許請求の範囲 1
 【物件名】 明細書 1
 【物件名】 図面 1
 【物件名】 要約書 1
 【包括委任状番号】 9706786

【書類名】 特許請求の範囲

【請求項 1】

原料を改質して改質ガスを生成する改質触媒を担持させた改質触媒通路を有する改質要素と、

供給空気により供給燃料を燃焼させ、燃焼ガスの熱により前記改質要素を加熱する燃焼ガス通路を有する燃焼要素と、を積層して備え、

前記燃料は改質要素で生成した生成改質ガスの少なくとも一部を、燃焼要素の燃焼ガスの流れ方向に予め設定した所定間隔をあけて前記燃焼ガス通路の複数の部位に夫々供給し、その下流部位で供給した生成改質ガスを燃焼させることを特徴とする燃料改質反応器。

【請求項 2】

前記改質要素と燃焼要素は、燃焼要素若しくは改質要素に設けた壁部または前記両者間に介在させた隔壁により画成して積層され、

前記改質要素は、生成した改質ガスを集合する生成改質ガスマニホールドに連通させて複数の供給通路を前記所定間隔毎に備える一方、供給通路同士の間原料蒸気マニホールドから生成改質ガスマニホールドに連通する改質触媒通路を備え、

前記各供給通路は、前記壁部または前記隔壁に設けた供給穴に連通され、

前記生成ガスマニホールドの生成改質ガスを前記各供給通路および供給穴を経由させて燃焼要素の燃焼ガス通路の複数の部位に供給することを特徴とする請求項 1 に記載の燃料改質反応器。

【請求項 3】

前記各供給通路は、前記生成改質ガスマニホールドに開口させて設け、

前記生成改質ガスマニホールドの生成改質ガスを、各供給通路および各供給孔を経由して燃焼要素の燃焼ガス通路に供給することを特徴とする請求項 2 に記載の燃料改質反応器。

【請求項 4】

前記燃焼要素は、前記壁部または隔壁に設けた複数の分配孔を経由して前記改質要素の供給通路に連通する主通路を備え、

前記主通路は分配マニホールドを介して前記生成改質ガスマニホールドに連通され、

前記生成改質ガスマニホールドの生成改質ガスを、分配マニホールドを経由して各燃焼要素の主通路に供給し、主通路から分配孔を経由して各供給通路に導入し、各供給孔を経由して燃焼要素の燃焼ガス通路に供給することを特徴とする請求項 2 に記載の燃料改質反応器。

【請求項 5】

前記分配マニホールドと生成改質ガスマニホールドとは、燃料改質反応器に対する外部配管により連通させていることを特徴とする請求項 4 に記載の燃料改質反応器。

【請求項 6】

前記改質要素の各供給通路と前記燃焼要素の燃焼ガス通路とは互いに交差させて配置していることを特徴とする請求項 1 から請求項 5 のいずれか一つに記載の燃料改質反応器。

【請求項 7】

前記改質要素は、原料マニホールドから原料蒸気マニホールドとを連通させる原料蒸発通路を備え、原料マニホールドの液体原料を原料蒸発通路を経由させ蒸発させて原料蒸気マニホールドに導入することを特徴とする請求項 1 から請求項 6 のいずれか一つに記載の燃料改質反応器。

【請求項 8】

前記供給通路および供給孔は、前記改質要素の原料蒸発通路に隣接する前記燃焼要素の燃焼ガス通路のガス流れ方向上流側にも生成改質ガスを供給するよう配置していることを特徴とする請求項 7 に記載の燃料改質反応器。

【請求項 9】

前記生成改質ガスマニホールドには、供給通路の開口に向かって夫々追加燃料を供給する追加燃料供給手段を備えることを特徴とする請求項 3 に記載の燃料改質反応器。

【請求項 1 0】

前記主通路に連なる分配マニホールド若しくは外部配管には、追加燃料を供給する追加燃料供給手段を備えることを特徴とする請求項 4 または請求項 5 に記載の燃料改質反応器。

【請求項 1 1】

前記改質要素の改質触媒通路は、複数の溝とこの溝の開口部分に接触する隔壁部材若しくは燃焼要素の壁部とで形成したことを特徴とする請求項 1 から請求項 1 0 のいずれか一つに記載の燃料改質反応器。

【請求項 1 2】

前記燃焼要素の燃焼ガス通路は、複数の溝とこの溝の開口部分に接触する隔壁部材若しくは改質要素の壁部とで形成したことを特徴とする請求項 1 から請求項 1 1 のいずれか一つに記載の燃料改質反応器。

【請求項 1 3】

前記燃焼要素の燃焼ガス通路は、その通路壁面には酸化触媒を担持させていることを特徴とする請求項 1 2 に記載の燃料改質反応器。

【請求項 1 4】

前記燃焼要素の運転圧力は、改質要素の運転圧力より低く設定していることを特徴とする請求項 1 から請求項 1 3 のいずれか一つに記載の燃料改質反応器。

【請求項 1 5】

前記燃料改質反応器は、改質要素に隣接させて水素分離膜要素および水素リッチガス出口に連なる水素リッチガス通路要素を備え、改質要素で生成した生成水素を水素分離膜要素を透過させて水素リッチガス通路要素に導入することを特徴とする請求項 1 から請求項 1 4 のいずれか一つに記載の燃料改質反応器。

【請求項 1 6】

前記燃料改質反応器は、前記水素リッチガス通路要素の両側に隣接して水素分離膜要素を積層し、さらに両側に改質要素および燃焼要素をこの順に積層して備えることを特徴とする請求項 1 5 に記載の燃料改質反応器。

【請求項 1 7】

前記燃料改質反応器の原料蒸気マニホールドおよび生成改質ガスマニホールドは、複数の燃焼要素、改質要素、隔壁、さらには水素透過膜要素および水素リッチガス通路要素の積層状態時に燃料改質反応器の外周面に開放された状態で形成し、外周側から蓋部材で塞いでマニホールドとすることを特徴とする請求項 2 から請求項 1 6 のいずれか一つに記載の燃料改質反応器。

【書類名】 明細書

【発明の名称】 燃料改質反応器

【技術分野】

【0001】

本発明は、燃料電池等に供給する改質ガスを生成する燃料改質反応器に関し、特に、改質要素と交互に積層配置した燃焼要素から発生する燃焼ガスの熱による加熱に好適な燃料改質反応器に関するものである。

【背景技術】

【0002】

従来から熱交換器等の加熱対象を加熱する高温ガスを発生させるため、希薄燃焼混合器のガス流れ方向に燃料を多段階に供給して NO_x や未燃焼燃料の発生を抑制しつつ高温ガスを発生させ、発生した高温ガスを下流に配置した加熱対象に供給する多段燃焼装置が提案されている（特許文献1参照）。

【特許文献1】 特開2002-295811号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0003】

しかしながら、上記従来例では、加熱対象が燃焼装置の下流に配置されているため、加熱対象の燃焼ガス流路の入口で最も高温となり出口に至るに連れて低温となる偏った温度分布となる。このため、燃焼ガス流路と加熱対象とを隔壁を介して隣合せて交互に積層して両者間で熱交換させるよう構成する燃料改質反応器に適用する場合には、燃焼ガス流路の温度分布状態により加熱対象である改質要素の温度分布制御ができないという課題があった。

【0004】

そこで本発明は、上記問題点に鑑みてなされたもので、改質要素の温度分布制御が可能な多段燃焼要素を備える燃料改質反応器を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0005】

本発明は、原料を改質して改質ガスを生成する改質触媒を担持させた改質触媒通路を有する改質要素と、供給空気により供給燃料を燃焼させ、燃焼ガスの熱により前記改質要素を加熱する燃焼ガス通路を有する燃焼要素と、を積層して備え、前記燃料は改質要素で生成した生成改質ガスの少なくとも一部を、燃焼要素の燃焼ガスの流れ方向に予め設定した所定間隔をあけて前記燃焼ガス通路の複数の部位に夫々供給し、その下流部位で供給した生成改質ガスを燃焼させるようにした。

【発明の効果】

【0006】

したがって、本発明では、原料を改質して改質ガスを生成する改質触媒を担持させた改質触媒通路を有する改質要素と、供給空気により供給燃料を燃焼させ、燃焼ガスの熱により前記改質要素を加熱する燃焼ガス通路を有する燃焼要素とを積層し、前記燃料は改質要素で生成した生成改質ガスの少なくとも一部を、燃焼要素の燃焼ガスの流れ方向に予め設定した所定間隔をあけて前記燃焼ガス通路の複数の部位に夫々供給し、その下流部位で供給した生成改質ガスを燃焼させるようにしたため、燃焼ガス通路の燃焼ガス流れ方向の複数領域で燃焼温度を個別に制御でき、加熱対象である改質要素の温度分布制御が可能となる。また、改質要素の全域に亘り高温に維持可能なため、改質触媒の反応速度を高く維持することができ、少ない改質触媒により効率的に改質可能とでき、燃焼要素と改質要素とを積層してコンパクトな燃料改質反応器とすることができる。さらに、従来のように燃焼ピーク温度を下げるために空気混合率を増大させる必要がなく、少ない空気量で燃焼ピーク温度を下げることも可能となるので、燃焼出口ガスに含まれる水を回収するラジエータに対する要求放熱量を減らすことができ、ラジエータの小型化が可能となる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0007】

以下、本発明の燃料改質反応器を各実施形態に基づいて説明する。

【0008】

(第1実施形態)

図1～図4は、本発明を適用した燃料改質反応器の第1実施形態を示し、図1は単燃料改質ユニットを積層した組立状態の燃料改質反応器の全体斜視図、図2は積層される単燃料改質ユニットの部分斜視図、図3は単燃料改質ユニットを構成する燃焼要素の平面図、図4は単燃料改質ユニットを構成する改質要素の平面図である。

【0009】

図1において、本実施形態の燃料改質反応器1は、下端エンドプレート2上に、単燃料改質ユニット3を複数層に互って積層し、上端に上端エンドプレート4を積層し、図示しない締付手段により積層方向に締付けて構成する。前記単燃料改質ユニット3は、図2に示すように、隔壁プレート6上にプレート状の改質要素7と同じくプレート状の燃焼要素8とを積層することにより構成している。

【0010】

前記燃焼要素8は、可燃性ガスを空気中の酸素により燃焼させ、発生する熱により隣接して積層配置した改質要素を加熱するよう機能するものである。このため、図3に示すように、燃焼要素8は、プレート本体10の一方の表面に多数の溝11Aを平行させて備え、これら溝11Aはこのプレート本体10に積層される隔壁プレート6により蓋して多数の酸化触媒通路(燃焼ガス通路ともいう)11を構成している。この酸化触媒通路11は、一方ではプレート本体10を切欠いて形成した空気マニホールド12に開口し、他方ではプレート本体10の端部に開口している。前記多数の溝11Aと隔壁プレート6で構成する酸化触媒通路11の通路壁には、後述する方法により酸化触媒を担持させている。酸化触媒通路11を構成する溝11Aには、空気マニホールド12に開放する端部近傍およびそれから所定間隔を持たせて背面に連通した供給孔13が空けられ、この供給孔13を経由させて、図2に示すように、改質要素7から生成改質ガスを導入する。

【0011】

前記燃焼要素8のプレート本体10の周縁には、酸化触媒通路11の両側において、一方の側に原料蒸気マニホールド15を備え、他方の側に原料マニホールド14、生成改質ガスマニホールド16、改質ガス出口マニホールド17を備える。これらのマニホールド14～17は、前記した酸化触媒通路11および空気マニホールド12とは連通しない状態で形成されている。前記原料蒸気マニホールド15と生成改質ガスマニホールド16とは、互いに対向した中央位置に配置され、プレート本体10の縁を切欠いて形成している。前記生成改質ガスマニホールド16を挟んでその両側には、改質ガス出口マニホールド17と原料マニホールド14とが、改質ガス出口マニホールド17は前記空気マニホールド12がある側に、原料マニホールド14はその反対側に夫々配置されている。改質ガス出口マニホールド17と原料マニホールド14とは、このプレート本体10においては他のマニホールド12、15、16と連通しない穴により形成している。

【0012】

前記燃焼要素8は、空気マニホールド12から空気を酸化触媒通路11に供給し、供給孔13から供給される生成改質ガス中の H_2 、 CO 、 CH_4 などの可燃性ガスを空気中の酸素により燃焼させて発熱させる。この燃焼は、酸化触媒通路11に開口させた複数の供給孔13から生成改質ガスが供給される毎にその下流で発生し、燃焼ガスの流れ方向において多段階に発生される。酸化触媒通路11で発生した燃焼熱は、プレート本体10に伝熱し、隣接している改質要素7のプレート本体20に伝熱して、改質要素7を燃焼熱により加熱する。

【0013】

前記酸化触媒通路11中の可燃性ガスに対する空気過剰率は、常に1を超えるリーン状態となるよう設定する。また、可燃性ガスの燃焼温度は、燃焼要素8に隣接している改質要素7における改質触媒の耐熱温度以下であり且つ改質触媒の反応速度から決まる改質触

媒反応下限温度以上となるように、供給孔 13 の数量と内径、燃焼要素 8 の運転圧、および改質要素 7 の運転圧を設定する。

【0014】

前記改質要素 7 は、図 4 に示すように、空気マニホールド 12、原料蒸気マニホールド 15、原料マニホールド 14、生成改質ガスマニホールド 16、改質ガス出口マニホールド 17 を燃焼要素 8 と同位置に備えるプレート本体 20 で形成している。この改質要素 7 は、原料マニホールド 14 に供給される水とガソリンの混合液を蒸発させて原料蒸気として原料蒸気マニホールド 15 に供給する原料蒸発通路 21 と、原料蒸気マニホールド 15 の原料蒸気を水蒸気改質して水素リッチな生成改質ガスとして生成改質ガスマニホールド 16 に供給する複数の改質触媒通路 22 と、生成改質ガスマニホールド 16 の生成改質ガスを前記燃焼要素 8 の供給孔 13 に供給する複数の供給通路 23 と、生成改質ガスマニホールド 16 の生成改質ガスを改質ガス出口マニホールド 17 に導く出口通路 24 とを備える。

【0015】

前記原料蒸発通路 21 は、前記燃焼要素 8 の酸化触媒通路 11 と平面図視状態で交差するよう平面上で複数回だけ折返して配置され、通路 21 内を流れる水とガソリンの混合液を隣接して積層している燃焼要素 8 から隔壁プレート 6 および／またはプレート本体 20 (10) を介して伝熱される熱エネルギーにより加熱・蒸発させて原料蒸気を生成する。

【0016】

前記複数の改質触媒通路 22 は、前記燃焼要素 8 の酸化触媒通路 11 と平面図視状態で交差する多数の溝 22A とこの溝 22A の蓋となる隔壁プレート 6 (若しくは、燃焼要素 8 のプレート本体 10 の裏面) とで形成される。複数の改質触媒通路 22 の夫々の端部は、原料蒸気マニホールド 15 と生成改質ガスマニホールド 16 とに開口している。複数の改質触媒通路 22 を構成する溝 22A の内壁面と隔壁プレート 6 表面には、後述する方法により改質触媒を担持させている。改質触媒は、水蒸気とガソリン混合気を水蒸気改質する水蒸気改質触媒であり、原料蒸気マニホールド 15 の原料蒸気を通過させることにより、改質触媒通路 22 中で水素リッチな改質ガスに水蒸気改質して生成改質ガスとして生成改質ガスマニホールド 16 に供給する。この水蒸気改質は、吸熱反応であり、隔壁プレート 6 およびプレート本体 20 (10) を介して接している燃焼要素 8 から熱伝導される燃焼熱により、水蒸気反応を進行させる。なお、改質触媒通路 22 での改質反応が、空気と燃料の反応である部分酸化反応と水蒸気改質反応を組合せて、発熱反応である部分酸化反応の熱で、吸熱反応である水蒸気改質に必要な熱をバランスさせて、燃焼触媒などによる外部からの熱の供給なしで改質を行う自熱改質方式 (Autothermal Reforming いわゆる、ATR 方式) であってもよい。

【0017】

前記複数の供給通路 23 は、図 2 にも斜視図で示すように、生成改質ガスマニホールド 16 に端部を開放し、改質触媒通路 22 と平行に配置された複数の溝 23A により形成され、燃焼要素 8 のプレート本体 10 で蓋されて通路 23 に形成される。この供給通路 23 には、燃焼要素 8 のプレート本体 10 に設けた供給孔 13 が開口し、生成改質ガスマニホールド 16 の生成改質ガスを前記供給孔 13 を介して酸化触媒通路 11 に供給するよう機能する。

【0018】

複数の供給通路 23 およびそれに連なる供給孔 13 は、前記空気マニホールド 12 と改質触媒通路 22 との間、および、改質触媒通路 22 と原料蒸発通路 21 との間に配置される他、この二本の通路 21、23 間に所定間隔毎に改質触媒通路 22 を設置することに代えて配置している。そして、燃焼要素 8 の運転圧力を前記改質要素 7 の運転圧力より低く設定するため、生成改質ガスマニホールド 16 の生成改質ガスが複数の供給通路 23 およびそれに連なる供給孔 13 を経由して燃焼要素 8 の酸化触媒通路 11 に生成改質ガスを供給することとなる。

【0019】

前記空気マニホール１２と隣接する部位および所定間隔毎に改質触媒通路２２間の供給通路２３およびそれに連なる供給孔１３は、酸化触媒通路１１の流れ方向に対して間隔を置いて酸化触媒通路１１に生成改質ガスを供給することにより、酸化触媒通路１１中での生成改質ガスの燃焼は、燃焼ガスの流れ方向に複数の生成改質ガス（可燃性ガス）が噴射させる。このことにより、酸化触媒通路１１中の燃焼温度分布を制御することが可能となり、特定個所での燃焼ピーク温度の上昇を招くことなく、酸化触媒通路１１全域に亘って一様に温度上昇させることも可能となり、改質要素７の改質触媒温度を上昇させて触媒反応速度を高く維持することが可能となる。また、酸化触媒通路１１中の特定の個所での燃焼ピーク温度が上昇することを抑制できるため、燃焼ピーク温度を低減でき、改質触媒の耐熱性向上や燃焼温度に比例して発生するNO_x放出を抑制させることもできる。

【００２０】

前記改質触媒通路２２と原料蒸発通路２１との間に配置される供給通路２３およびそれに連なる供給孔１３は、燃焼要素８の原料蒸発通路２１に隣接する酸化触媒通路１１の上流側に生成改質ガスを供給し、酸化触媒通路１１での燃焼反応により発生する燃焼熱により改質要素７の原料蒸発通路２１中での水とガソリンの混合液から原料蒸気が生成されることを促進させる。即ち、改質触媒に接した上流側の燃焼要素８温度を局所的に上昇させることなく、原料蒸発通路２１の熱源となる酸化触媒通路１１部分へ原料蒸発に必要なエネルギー量を任意に添加することができる。

【００２１】

前記隔壁プレート６は、具体的形状は図示しないが、空気マニホール１２、原料蒸気マニホール１５、原料マニホール１４、生成改質ガスマニホール１６、改質ガス出口マニホール１７を燃焼要素８と同位置に備える板材で形成している。また、改質要素７の供給通路２３と燃焼要素８の酸化触媒通路１１とが交差する部分に夫々供給孔１３を形成している。

【００２２】

以上の構成になる燃焼要素８、改質要素７および隔壁プレート６は、図２に示す順に積層することで、単燃料改質ユニット３を構成し、この単燃料改質ユニット３を上下端エンドプレート２、４間に複数組を積層させ、積層方向に締付けることで、図１に示す燃料改質反応器１を構成することができる。

【００２３】

積層状態の燃料改質反応器１は、図１に示すように、空気マニホール１２、原料蒸気マニホール１５（図示の斜視図では、裏側に位置する）、および生成改質ガスマニホール１６が外部に開放した形状をなし、原料マニホール１４および改質ガス出口マニホール１７は内部に隠れる状態となり、夫々原料入口２５および改質ガス出口２６を介して外部に連通可能となる。

【００２４】

本実施形態の燃料改質反応器１では、燃焼要素８、改質要素７および隔壁プレート６には、酸化触媒および改質触媒を積層前に予め塗布して焼成・担持させず、積層後に開放している各要素の積層面側から、酸化触媒通路１１の壁面に酸化触媒を塗布する一方、改質触媒通路２２に改質触媒を塗布し、その後に各マニホール１２、１５、１６をカバーにより密閉し、各触媒を乾燥・焼成するようにしている。以下に積層組立後における燃料改質反応器１の製作手順について説明する。

【００２５】

先ず、開放している空気マニホール１２側から、酸化触媒、水、バインダーを混合した酸化触媒スラリーを酸化触媒通路１１に流入させ、酸化触媒通路１１の内壁に酸化触媒スラリーを塗布する。同様に、開放している原料蒸気マニホール１５側から、改質触媒と水、バインダーを混合した改質触媒スラリーを改質触媒通路２２に流入させ、改質触媒通路２２の内壁に改質触媒スラリーを塗布する。この状態では、供給通路２３は生成改質ガスマニホール１６に開口しているため改質触媒スラリーは流入されず、供給孔１３は酸化触媒スラリーにより塞がれる。

【００２６】

次いで、開放している原料蒸気マニホールド１５および生成改質ガスマニホールド１６をカバー２８、２９により密閉すると共に、改質ガス出口マニホールド１７に連なる改質ガス出口２６を密閉し、空気入口２７を備えたカバー３０により空気マニホールド１２を密閉する（この状態では、酸化触媒通路１１の出口と、原料入口２５が開放されている）。そして、原料入口２５から加圧した空気を供給する。空気は原料マニホールド１４、原料蒸発通路２１、原料蒸気マニホールド１５、改質触媒通路２２、生成改質ガスマニホールド１６を経由して供給通路２３に入込み、供給孔１３を開通させて酸化触媒通路１１に至り、空気マニホールド１２および酸化触媒通路１１の出口から外部に流れる。

【００２７】

そして、原料入口２５、空気入口２７から高温空気を供給して、酸化触媒通路１１の酸化触媒および改質触媒通路２２の改質触媒を焼成し、触媒スラリーから水分を除去する。このように、積層後に触媒を塗布し、焼成することで、各要素の積層面に触媒が存在しない状態で組立を完了させ、燃料改質反応器１として使用可能とできる。

【００２８】

以上の構成になる燃料改質反応器１においては、改質ガス出口２６を閉じた状態で、空気入口２７から空気を供給すると共に可燃性ガス、例えば、気化させたガソリン等を空気入口２７および／または原料入口２５から供給し、酸化触媒通路１１内で燃焼させて暖機させ、酸化触媒出口から酸化触媒反応ガスとして放出される。空気入口２７から供給した可燃性ガスは、酸化触媒通路１１の主に上流部分で燃焼して上流部分の改質要素７を暖機し、原料入口から供給した可燃性ガスは、原料蒸発通路２１、原料蒸気マニホールド１５、改質触媒通路２２、生成改質ガスマニホールド１６、供給通路２３を経て供給孔１３から酸化触媒通路１１に供給され、酸化触媒通路１１の全域で燃焼して全域の改質要素７を暖機し、酸化触媒通路１１の出口から酸化触媒反応ガスとして放出される。

【００２９】

暖機の進行に伴い、空気入口２７からは空気のための供給に切換えると共に原料入口２５から液体原料、例えば、ガソリンと水との混合液を供給する。原料は原料蒸発通路２１を通過することで原料蒸気に生成されて原料蒸気マニホールド１５に至り、次いで、改質触媒通路２２を通過することで改質ガスに生成されて生成改質ガスマニホールド１６に至り、供給通路２３および供給孔１３を経由して酸化触媒通路１１に供給され、酸化触媒通路１１の全域で燃焼して全域の改質要素７を暖機する。

【００３０】

各要素の温度が暖機完了温度に達した段階で、液体原料の供給量を規定量に増量させ、改質要素７の運転圧力を維持しつつ改質ガス出口２６から生成改質ガスを吐出させ、例えば、燃料電池や貯蔵手段に供給を開始させることができる。なお、酸化触媒通路１１の出口から放出される酸化触媒反応ガスは、図示しないラジエータを経由させて含まれる水および熱を回収することが望ましい。

【００３１】

本実施形態においては、以下に記載する効果を奏することができる。

【００３２】

（ア）原料を改質して改質ガスを生成する改質触媒を担持させた改質触媒通路２２を有する改質要素７と、供給空気により供給燃料を燃焼させ、燃焼ガスの熱により前記改質要素７を加熱する燃焼ガス通路（酸化触媒通路１１）を有する燃焼要素８とを積層し、前記燃料は改質要素７で生成した生成改質ガスの少なくとも一部を、燃焼要素８の燃焼ガスの流れ方向に予め設定した所定間隔をあけて前記燃焼ガス通路１１の複数の部位に夫々供給し、その下流部位で供給した生成改質ガスを燃焼させるようにしたため、燃焼ガス通路１１の燃焼ガス流れ方向の複数領域で燃焼温度を個別に制御でき、加熱対象である改質要素７の温度分布制御が可能となる。また、改質要素７の全域に亘り高温に維持可能なため、改質触媒の反応速度を高く維持することができ、少ない改質触媒により効率的に改質可能とでき、燃焼要素８と改質要素７とを積層してコンパクトな燃料改質反応器１とすること

ができる。さらに、従来のように燃焼ピーク温度を下げるために空気混合率を増大させる必要がなく、少ない空気量で燃焼ピーク温度を下げることで、燃焼出口ガスに含まれる水を回収するラジエータに対する要求放熱量を減らすことができ、ラジエータの小型化が可能となる。

【 0 0 3 3 】

(イ) 改質要素 7 と燃焼要素 8 は、燃焼要素 8 若しくは改質要素 7 に設けた壁部 1 0 (2 0) または前記両者間に介在させた隔壁 6 により画成して積層され、前記改質要素 7 は、生成した改質ガスを集合する生成改質ガスマニホール 1 6 に連通させて複数の供給通路 2 3 を前記所定間隔毎に備える一方、供給通路 2 3 同士の間原料蒸気マニホール 1 5 から生成改質ガスマニホール 1 6 に連通する改質触媒通路 2 2 を備え、前記各供給通路 2 3 は、前記壁部 1 0 (2 0) または前記隔壁 6 に設けた供給穴 1 3 に連通され、前記生成ガスマニホール 1 6 の生成改質ガスを前記各供給通路 2 3 および供給穴 1 3 を経由させて燃焼要素 8 の燃焼ガス通路 1 1 の複数の部位に供給するため、燃焼要素 8 への複数の供給通路 2 2 を確保しつつ改質要素 7 と燃焼要素 8 の積層化が可能となる。

【 0 0 3 4 】

(ウ) 各供給通路 2 3 は、生成改質ガスマニホール 1 6 に開口させて設け、生成改質ガスマニホール 1 6 の生成改質ガスを、各供給通路 2 3 および各供給孔 1 3 を経由して燃焼要素 8 の燃焼ガス通路 1 1 に供給するため、改質要素 7 の 1 つの層で改質ガスの生成と、生成した改質ガスの燃焼要素 8 への多段供給を可能とできる。

【 0 0 3 5 】

(エ) 改質要素 7 の各供給通路 2 3 と前記燃焼要素 8 の燃焼ガス通路 1 1 とは互いに交差させて配置しているため、燃焼要素 8 の燃焼ガス通路 1 1 の流れ方向の複数の領域へ生成改質ガスを個別に多段階に供給可能とできる。

【 0 0 3 6 】

(オ) 改質要素 7 は、原料マニホール 1 4 から原料蒸気マニホール 1 5 とを連通させる原料蒸発通路 2 1 を備え、原料マニホール 1 4 の液体原料を原料蒸発通路 2 1 を経由させ蒸発させて原料蒸気マニホール 1 5 に導入するため、燃焼要素 8 との組合せが可能となり、燃焼要素 8 からの熱供給により原料から原料蒸気を生成可能となる。

【 0 0 3 7 】

(カ) 供給通路 2 3 および供給孔 1 3 は、前記改質要素 7 の原料蒸発通路 2 1 に隣接する前記燃焼要素 8 の燃焼ガス通路 1 1 のガス流れ方向上流側にも生成改質ガスを供給するように配置しているため、改質要素 7 に接した燃焼要素 8 の温度を必要以上に上昇させることなく、原料蒸発通路 2 1 を加熱する燃焼要素 8 の燃焼ガス通路 1 1 部分へエネルギーを供給できる。ちなみに、従来例のように、供給通路 2 3 および供給孔 1 3 が上記燃焼ガス通路 1 1 部分にない場合には、原料蒸発に必要な生成改質ガス (エネルギー) を、改質触媒通路 2 2 に接した上流側燃焼ガス通路 1 1 に付加して供給する必要があるが、改質触媒通路 2 2 に接した燃焼ガス通路 1 1 の燃焼温度が上昇してしまい、耐熱性や NO_x 生成の課題が生じる。

【 0 0 3 8 】

(キ) 改質要素 7 の改質触媒通路 2 2 は、複数の溝 2 2 A とこの溝 2 2 A の開口部分に接触する隔壁部材 6 若しくは燃焼要素 8 の壁部 1 0 とで形成したため、改質触媒通路 2 2 の表面積が増え、担持できる触媒量が増え、且つ、燃焼要素 8 からの熱伝達が促進される。また、機械的強度も向上できる。

【 0 0 3 9 】

(ク) 燃焼要素 8 の燃焼ガス通路 1 1 は、複数の溝 1 1 A とこの溝 1 1 A の開口部分に接触する隔壁部材 6 若しくは改質要素 7 の壁部 2 0 とで形成したため、燃焼ガス通路 1 1 の表面積が増え、担持できる触媒量が増え且つ、改質要素 7 への熱伝達が促進される。また、機械的強度も向上できる。

【 0 0 4 0 】

(ケ) 燃焼要素 8 の燃焼ガス通路 1 1 は、その通路 1 1 A 壁面には酸化触媒を担持させ

ているため、燃焼ガス通路１１内での生成改質ガスおよび／または追加燃料の燃焼が確実に行える。また、燃焼ガス通路１１を形成する構造体１０の表面に触媒が密接しているため、構造体１０付近（通路表面近傍）での燃焼量が増え、改質要素７への熱伝導が促進される。

【００４１】

（コ）燃焼要素８の運転圧力は、改質要素７の運転圧力より低く設定しているため、改質要素７から燃焼要素８への生成改質ガス供給が可能となる。

【００４２】

（サ）燃料改質反応器１の原料蒸気マニホールド１５および生成改質ガスマニホールド１６は、複数の燃焼要素８、改質要素７、隔壁６、さらには必要に応じて、水素透過膜要素および水素リッチガス通路要素の積層状態時に燃料改質反応器１の外周面に開放された状態で形成し、外周側から蓋部材２８～３０で塞いで各マニホールドとすることにより、各要素を積層後に、改質要素７の改質触媒通路２２に触媒を塗布し、その後に密閉することで、燃料改質反応器１の製作が容易になる。

【００４３】

（第２実施形態）

図５～図９は、本発明を適用した燃料改質反応器の第２実施形態を示し、図５は改質要素を主体として各要素の通路との位置関係を示す透視図、図６は単燃料改質ユニットの部分斜視図、図７は組立状態の燃料改質反応器の全体斜視図、図８は供給空気加熱手段の斜視図、図９は加熱手段を含む組立状態の燃料改質反応器の全体斜視図である。本実施形態においては、燃焼要素の流れ方向各領域毎に燃焼温度を独立して制御可能としたものである。なお、第１実施形態と同一装置には同一符号を付してその説明を省略ないし簡略化する。

【００４４】

図５において、本実施形態の改質要素７は、供給通路２３の生成改質ガスマニホールド１６への開口に対面したカバー２９の位置に夫々追加燃料供給弁３１からなる追加燃料導入手段を備える。生成改質ガスマニホールド１６には、追加燃料供給弁３１と供給通路２３の開口との間には、追加燃料供給弁３１から噴射された追加燃料を供給通路２３へ案内するテーパ孔３３を形成した燃料ガイド３２を配置している。

【００４５】

したがって、追加燃料供給弁３１から噴射された追加燃料は、燃料ガイド３２のテーパ孔３３に案内されて供給通路２３の開口に導入されて気化し、生成改質ガスに追加燃料ガスが加算される。これらのガスは、供給通路２３および供給孔１３から酸化触媒通路１１に供給され、供給孔１３の下流側の酸化触媒通路１１内で追加された追加燃料と生成改質ガスの両者が燃焼される。このため、追加された追加燃料ガスが燃焼される供給孔１３下流領域の酸化触媒通路１１の燃焼温度を部分的に上昇させる。燃焼温度の上昇は隣接する改質要素７に熱伝導して該当する改質触媒通路２２の温度を上昇させる。

【００４６】

各追加燃料供給弁３１からの燃料の導入量は、例えば、運転中の各要素部の温度を計測し、改質触媒反応下限温度以下となる改質触媒通路２２に対し、必要な燃料導入量を算出することなどで決定できる。そして、該当する改質触媒通路２２の空気マニホールド１２側の供給通路２３に対面している追加燃料供給弁３１から追加燃料を噴出させるようにする。このようにして、燃焼要素８の流れ方向の部分領域毎に、必要に応じて独立して温度制御することが可能である。

【００４７】

なお、該当する改質触媒通路２２の空気マニホールド１２側の供給通路２３に対面している追加燃料供給弁３１から追加燃料を噴出させるのみでなく、さらには隣接して積層されている改質要素７の供給通路２３に対面する追加燃料供給弁３１から夫々追加燃料を噴出させるようにしてもよい。また、前記燃料ガイド３２のテーパ孔３３を積層方向に連ねてスリット状として、追加燃料噴射弁３１から噴射された追加燃料が、該当する供給通路

23のみでなく隣接して積層されている改質要素7の供給通路23にも導入されるようにしてもよい。

【0048】

また、第1実施形態の燃料改質反応器1にも適用できるが、酸化触媒通路11の出口から放出される酸化触媒反応ガスは高温であり、含まれる水および熱を回収するためにラジエータを経由させる必要があるが、図8、9に示すように、酸化触媒反応ガスにより入口空気を加熱することもできる。即ち、外気（空気）を熱交換器35を経由して燃料改質反応器1の空気マニホールド12に導入する空気導入通路36を形成し、図9に示すように、この空気導入通路36を燃料改質反応器1に組合せて構成し、酸化触媒反応ガスを熱交換器35（一方の熱交換通路）を経由して放出させ、その後に含まれる水および熱を回収するためにラジエータを経由させるようにする。熱交換器35の他方の熱交換通路を経由させた外気（空気）は酸化触媒反応ガスとの熱交換により加熱されて燃料改質反応器1の空気マニホールド12から導入される。このようにすると、酸化触媒反応ガスに含まれる水および熱を回収するためにラジエータの要求方熱量をより一層小さくできラジエータの小型が図れる他、加熱された空気が導入されるために燃料改質反応器1の酸化触媒反応温度の高温化および安定化を図ることができる。

【0049】

本実施形態においては、第1実施形態における効果（ア）～（サ）に加えて以下に記載した効果を奏することができる。

【0050】

（シ）生成改質ガスマニホールド16には、供給通路23の開口に向かって夫々追加燃料を供給する追加燃料供給手段である追加燃料供給弁31を備えるため、燃焼要素8の燃焼ガス通路11の流れ方向の部分領域毎に、必要に応じて独立させて温度制御が可能となる。

【0051】

（第3実施形態）

図10～図13は、本発明を適用した燃料改質反応器の第3実施形態を示し、図10は燃焼要素の平面図、図11は改質要素の平面図、図12は単燃料改質ユニットの部分斜視図、図13は組立状態の燃料改質反応器の全体斜視図である。本実施形態においては、燃焼要素への生成改質ガスの供給量を燃焼ガスの流れ方向の各位置において均等化させるようにしたものである。なお、第1、2実施形態と同一装置には同一符号を付してその説明を省略ないし簡略化する。

【0052】

図10において、本実施形態の燃焼要素8には、複数配列した酸化触媒通路11の略中央部分に酸化触媒通路11と平行する主通路40を配置し、主通路40の底部に改質要素7の各供給通路23に連なる分配溝41を夫々設けるようにしている。各供給通路23は、後述するように、生成改質ガスマニホールド16には開口されていない。前記主通路40には、空気マニホールド12内に他と連通しない穴で形成した分配マニホールド42から生成改質ガスおよび／または追加燃料が供給され、これらガス若しくは液体燃料を主通路40でガス化して分配溝41を経由して供給通路23に供給するようにする。各供給通路23への分配量は分配溝41の通路面積により調整するようにしている。

【0053】

図11に示すように、本実施形態の改質要素7は、各供給通路23を構成する溝23Aの両端部を生成改質ガスマニホールド16および原料蒸気マニホールド15に開口する手前で止めて形成し、燃焼要素8のプレート本体10が積層された際に閉じた供給通路23を構成する。また、空気マニホールド12内には、他と連通しない穴で形成した分配マニホールド42を形成している。

【0054】

以上の構成になる改質要素7と燃焼要素8とを隔壁プレート6上に積層させると、図12に示すように、分配マニホールド42から供給される追加燃料および／または生成改質

ガスは、主通路４０から各分配溝４１を経由して改質要素７の各供給通路２３に供給でき、各供給通路２３から各々の供給孔１３を経由して燃焼要素８の各酸化触媒通路１１に供給することができる。この場合の隔壁プレート６は、積層される改質要素７、燃焼要素８と同様の配置において、各マニホールドが形成されると共に、燃焼要素８の主通路４０と改質要素７の供給通路２３とが交差する部分に分配溝４１を形成し、改質要素７の供給通路２３と燃焼要素８の酸化触媒通路１１とが交差する部分に夫々供給孔１３を形成している。

【００５５】

前記分配マニホールド４２には、図１３に示すように、エンドプレート４に生成改質ガスマニホールド１６と分配マニホールド４２とを連通させる連結通路４３を設けて、生成改質ガスマニホールド１６の生成改質ガスを供給するようにしている。また、連結通路４３には追加燃料噴射弁４４が配置され、追加的に液体燃料を分配マニホールド４２に供給可能としている。

【００５６】

以上のように構成した本実施形態の燃料改質反応器１では、連結通路４３および分配マニホールド４２を経由して供給された生成改質ガスは、燃焼要素８の酸化触媒通路１１の燃焼反応により高温となっているプレート本体１０に設けた主通路４０内で昇温されて、各分配溝４１を経由して改質要素７の供給通路２３に供給される。このため、供給通路２３から各供給穴１３を経由して燃焼要素８の酸化触媒通路１１に供給される際には、各酸化触媒通路１１へ均等に生成改質ガスを供給することができる。

【００５７】

また、追加燃料噴射弁４４から噴射された追加燃料は、分配マニホールド４２を経由して主通路４０に供給されるが、主通路４０が前記したように高温となっているため、液体のまま追加燃料噴射弁４４から噴射されても、主通路４０内で確実に気化させることができる。気化した追加燃料は、生成改質ガスと共に各分配溝４１および供給通路２３を経由して各供給穴１３から酸化触媒通路１１に供給でき、燃料改質反応器１の全体の温度を追加燃料分だけ上昇させる。なお、追加燃料の導入量は、運転時に各要素部の温度を計測し、改質触媒の最低温度が、反応下限温度以上となるように必要な燃料導入量を算出することなどで決定することができる。

【００５８】

本実施形態においては、第１実施形態における効果（ア）、（イ）、（エ）～（サ）に加えて、以下に記載する効果を奏することができる。

【００５９】

（ス）燃焼要素８は、前記壁部１０または隔壁６に設けた複数の分配孔４１を経由して前記改質要素７の供給通路２３に連通する主通路４０を備え、前記主通路４０は分配マニホールド４２を介して前記生成改質ガスマニホールド１６に連通され、前記生成改質ガスマニホールド１６の生成改質ガスを、分配マニホールド４２を経由して各燃焼要素８の主通路４０に供給し、主通路４０から分配孔４１を経由して各供給通路２３に導入し、各供給孔１３を経由して燃焼要素８の燃焼ガス通路１１に供給するため、分配マニホールド４２から全ての燃焼ガス通路１１に左右均等に燃料を供給できる。また、高温の燃焼要素８内の主通路４０で昇温されるため、生成改質ガスに追加燃料を加える場合にも、追加燃料の気化を促進させることができる。

【００６０】

（セ）分配マニホールド４２と生成改質ガスマニホールド１６とは、燃料改質反応器１に対する外部配管４３により連通させているため、改質要素７から流れ方向の異なる分配マニホールド４２へ生成改質ガスを流通させることができる。

【００６１】

（ソ）主通路４０に連なる分配マニホールド４２若しくは外部配管４３には、追加燃料を供給する追加燃料供給手段である追加燃料噴射弁４４を備えるため、この追加燃料を生成改質ガスと分配マニホールド４２内での混合を促進した後に各主通路４０に均一な状態

で供給できる。この混合状態の追加燃料は、高温の燃焼要素 8 内の主通路 4 0 において昇温され、追加燃料の気化を促進させた後に各分配孔 4 1 を経由して供給通路 2 3 および供給孔 1 3 を経由して燃焼ガス通路である酸化触媒通路 1 1 に均一に供給することができる。

【0062】

（第 4 実施形態）

図 1 4 ～図 2 2 は、本発明を適用した燃料改質反応器の第 4 実施形態を示し、図 1 4 は燃焼要素の平面図、図 1 5 は改質要素の平面図、図 1 6 は水素分離膜要素の平面図、図 1 7 および図 1 8 は水素分離膜要素の断面図、図 1 9 および図 2 0 は積層状態を示す斜視図、図 2 1 は改質要素を主体として各要素の通路との位置関係を示す透視図、図 2 2 は組立状態の燃料改質反応器の全体斜視図である。本実施形態においては、第 1 および第 2 実施形態において、水素分離膜要素を用いて生成改質ガスから水素リッチガスを分離して供給可能としたものである。なお、第 1 および第 2 実施形態と同一装置には同一符号を付してその説明を省略ないし簡略化する。

【0063】

図 1 4 において、本実施形態の燃焼要素 8 は、基本的に第 1 および第 2 実施形態と同様の構成であるが、改質ガスマニホール드가削除されて、空気マニホール드가 1 2 を挟んで反対側に他と連通しない穴で形成した水素リッチガスマニホール드가 4 6 を新設している。また、生成改質ガスマニホール드가存在した部分は他と連通しない改質排気ガスマニホール드가 1 6 A を形成している。

【0064】

改質要素 7 は、図 1 5 に示すように、基本的に第 1 および第 2 実施形態と同様の構成であるが、改質ガスマニホール드가削除されて、空気マニホール드가 1 2 を挟んで反対側に他と連通しない穴で形成した水素リッチガスマニホール드가 4 6 を新設している。また、生成改質ガスマニホール드가存在した部分は、改質触媒通路 2 2 の出口と供給通路 2 3 の入口とが開く改質排気ガスマニホール드가 1 6 A を形成している。

【0065】

本実施形態で新設する水素分離膜要素 4 8 は、基本的に多数の支柱を介在させることにより間隔をあけて配置した多数の小穴を備える 2 枚のプレートを備え、これらのプレートの周囲を各マニホール드를形成する枠体により取囲み、プレート表面に水素分離膜を形成し、プレート同士の空間を水素リッチガス通路としたものである。以下、図 1 6 ～図 1 8 により具体的に説明する。

【0066】

前記水素分離膜要素 4 8 は、図 1 6 の平面図に示すように、その枠体 4 9 に、燃焼要素 8 および改質要素 7 と同様の配置で、原料マニホール드가 1 4、原料蒸気マニホール드가 1 5、改質排気ガスマニホール드가 1 6 A、空気マニホール드가 1 2、および、水素リッチガスマニホール드가 4 6 を備える。

【0067】

前記水素分離膜要素 4 8 は、また、図 1 7 の断面図に示すように、周囲の枠体 4 9（例えば、ステンレス鋼製）の積層方向中央部分に枠体 4 9 と一体に薄板のベースプレート 5 0 を設け、枠体 4 9 とベースプレート 5 0 で形成する窪みに多数の支柱 5 1（例えば、ステンレス鋼製）を所定間隔、例えば、等間隔に配置し、多数の支柱 5 1 の頂部と窪み内周面とに支持させて多数の小穴 5 3 を備えるプレート 5 2（例えば、ステンレス鋼製）をレーザー溶接や拡散溶接により固定して構成している。プレート 5 2 に設ける多数の小穴 5 3 は、ケミカルエッチング等により形成することができる。支柱 5 1 とプレート 5 2 とは窪みに組込む以前に予め溶接等により一体化させてもよい。

【0068】

多数の小穴 5 3 を備えるプレート 5 2 の表面には、パラジウム（Pd）と水、バインダーを混合したパラジウムスラリーを塗布（例えば、1 ～ 10 μm の厚さで）し乾燥させ、パラジウム箔をコーティングする。このパラジウム箔は、パラジウム（Pd）を主成分と

する水素透過膜５４となる。支柱５１で間隔をあけたプレート５２とベースプレート５０との間の空間は水素リッチガス通路５５となる。図示例では、ベースプレート５０の両側の窪みに、多数の支柱５１を配置し多数の小穴５３を備えるプレート５２を配置しているため、ベースプレート５０の両側の空間が水素リッチガス通路５５となる。これらの水素リッチガス通路５５は枠体４９に設けた水素リッチガスマニホールド４６に連通させている。

【００６９】

前記水素分離膜要素４８は、鎖線で図示するように、隣接する改質要素７により挟んで配置し、改質要素７の改質触媒通路２２（溝２２Ａ）の蓋を形成するよう積層される。改質要素７の改質触媒通路２２等の各通路は相対的に高圧に設定されており、水素透過膜５４に加わる面圧は支柱５１で支えるプレート５２に受け止められる。

【００７０】

前記水素分離膜要素４８は、図１７に示す構成の他に、例えば、図１８に示すように、構成することもできる。図１８における水素分離膜要素４８においては、積層方向中央部分で２分割した状態で、多数の小穴５３を有するプレート５２と多数の支柱５１および枠体４９を溶接等により一体化させて形成し、プレート５２から起立した支柱５１先端同士および枠体４９同士を接触させて両者を拡散接合して形成する。プレート５２表面には、図１７の場合と同様にパラジウムによる水素分離膜５４を形成し、支柱５１同士により間隔をあけた空間を水素リッチガス通路５５に構成する。

【００７１】

図１９および図２０は、燃焼要素８と改質要素７と水素分離膜要素４８とを積層した状態の斜視図である。改質要素７の改質触媒通路２２等の各通路は相対的に高圧に設定されており、改質要素７の改質触媒通路２２を通過する原料蒸気は、改質触媒による水蒸気改質により生成改質ガスに逐次改質され、生成改質ガス中の水素成分が水素透過膜５４により選択分離されて前記圧力差により透過して、水素リッチガスとして前記水素リッチガス通路５５を経由して水素リッチガスマニホールド４６に導入されることになる。一方、水素分離膜５４を通過できなかった残りの水素や改質反応で生成したメタンやＣＯは、図１９中の矢印のように、改質排気ガスマニホールド１６Ａに至り、必要に応じて追加燃料供給弁３１から噴射された追加燃料と混合されて、供給通路２３、供給穴１３を経由して燃焼要素８の酸化触媒通路１１に供給される。酸化触媒通路１１では第１および第２実施形態と同様にして燃焼反応され、改質要素７の改質触媒通路２２および原料蒸発通路２１を加熱するようにしている。

【００７２】

前記水素分離膜要素４８は、両面に水素分離膜５４を備えるものであるため、通常は図２０に示す積層状態で使用される。即ち、水素分離膜要素４８の両側に改質要素７を対称に配置し、対称となった改質要素７の外側に燃焼要素８を対称に配置するようにしている。この対称配置の燃焼要素８には隔壁プレート６で蓋を形成して改質要素７、水素分離膜要素４８の順に積層して構成する。この場合の隔壁プレート６は、積層される改質要素７、燃焼要素８および水素分離膜要素４８と同様の配置において、各マニホールドが形成されると共に、改質要素７の供給通路２３と燃焼要素８の酸化触媒通路１１とが交差する部分に夫々供給孔１３を形成している。

【００７３】

そして、これらを所定数だけ積層した状態で、下端エンドプレート２と上端エンドプレート４で挟み、図示しないスタッドボルトで積層方向に締付け、図２１に示すように、開放している原料蒸気マニホールド１５および改質排気ガスマニホールド１６Ａをカバー２８、２９で密閉すると、図２２に示す燃料改質反応器１を構成することができる。なお、図２１に示す構成では、第２実施形態と同様に、改質排気ガスマニホールド１６Ａに開口する供給通路２３に向けて、カバー２９に追加燃料供給弁３１を追加し、改質排気ガスマニホールド１６Ａ内に燃料ガイド３２を設けている。前記上端エンドプレート４には、水素リッチガスマニホールド４６に連通させて水素リッチガス出口５６が配置され、改質排

気ガスマニホールド 16A のカバー 29 には、原料マニホールド 14 に連通させた原料入口 25 を形成している。なお、図示するカバー 29 には、追加燃料を噴射する追加燃料供給弁 31 を備える構成となっているが、この追加燃料供給弁 31 は必要に応じて設ける。

【0074】

本実施形態においては、第 1 実施形態における効果（ア）～（ウ）、（エ）～（カ）、（キ）～（コ）、（サ）および第 2 実施形態における効果（シ）に加えて、以下に記載する効果を奏することができる。

【0075】

（タ）燃料改質反応器 1 は、改質要素 7 に隣接させて水素分離膜 54 および水素リッチガス出口 56 に連なる水素リッチガス通路要素 55 を備え、改質要素 7 で生成した生成水素を水素分離膜要素 48 を透過させて水素リッチガス通路要素 55 に導入するため、改質要素 7 で生成した水素は水素分離膜 54 により高純度化され水素リッチガスとなり、水素リッチガス出口 56 から燃料電池などへ供給することができる。一方、水素分離膜 54 を通過できなかった残りの水素や改質反応で生成したメタンや CO は、必要に応じて追加燃料と混合され、改質排気ガスとして、実施形態 1 および 2 と同様に燃焼要素 8 で燃焼反応し、改質要素 7 および原料蒸発通路 21 を加熱するため、無駄とならない。

【0076】

（チ）燃料改質反応器 1 は、前記水素リッチガス通路 55 の両側に隣接して水素分離膜 54 を積層し、さらに両側に改質要素 7 および燃焼要素 8 をこの順に積層して備えるため、改質要素 7 での改質が水蒸気改質のような吸熱反応の場合、燃焼要素 8 の熱を改質触媒に伝え、温度が下がった状態の生成改質ガスが水素分離膜 54 に到達するため、水素分離膜 54 の温度を燃焼要素 8 の燃焼温度より低く保ち、水素分離膜 54 の熱耐久性を向上させることができる。しかも、水素分離膜要素 54 の原料蒸気マニホールド 15 および改質排気ガスマニホールド 16A を、水素分離膜 54 および水素リッチガス通路 55 に接しない構造にしていることにより、改質要素 7 の供給通路 23 による燃焼要素 8 へのガス供給経路を確保しつつ各要素を積層することが可能となる。

【0077】

（第 5 実施形態）

図 23 ～図 29 は、本発明を適用した燃料改質反応器の第 5 実施形態を示し、図 23 は燃焼要素の平面図、図 24 は改質要素の平面図、図 25 は水素分離膜要素の平面図、図 26 および図 27 は積層状態を示す斜視図、図 28 は改質要素を主体として各要素の通路との位置関係を示す透視図、図 29 は組立状態の燃料改質反応器の全体斜視図である。本実施形態においては、第 3 実施形態において、水素分離膜要素を用いて生成改質ガスから水素リッチガスを分離して供給可能としたものである。なお、第 3 実施形態と同一装置には同一符号を付してその説明を省略ないし簡略化する。

【0078】

図 23 において、本実施形態の燃焼要素 8 は、基本的に第 3 実施形態と同様の構成であるが、改質ガスマニホールドが削除されて、空気マニホールド 12 を挟んで両側に他と連通しない穴で形成した水素リッチガスマニホールド 58 を新設している。また、生成改質ガスマニホールドが存在した部分は他と連通しない改質排気ガスマニホールド 16A を形成している。

【0079】

改質要素 7 は、図 24 に示すように、基本的に第 3 実施形態と同様の構成であるが、改質ガスマニホールドが削除されて、空気マニホールド 12 を挟んで両側に他と連通しない穴で形成した水素リッチガスマニホールド 58 を新設している。また、生成改質ガスマニホールドが存在した部分は、改質触媒通路 22 の出口が開口する改質排気ガスマニホールド 16A を形成している。

【0080】

本実施形態の水素分離膜要素 59 は、図 25 に平面図を示すように、その枠体 49 に、燃焼要素 8 および改質要素 7 と同様の配置で、原料マニホールド 14、原料蒸気マニホー

ルド 15、改質排気ガスマニホール ド 16 A、空気マニホール ド 12、分配マニホール ド 42、および、水素リッチガスマニホール ド 58を備える。この水素分離膜要素 59は、第3実施形態における水素分離膜要素 48と同様に、図示しないが、多数の支柱を介在させることにより間隔をあけて配置した多数の小穴を備える2枚のプレートを備え、これらのプレートの周囲を各マニホール ドを形成する枠体 49により取囲み、プレート表面に水素分離膜 54を形成し、プレート同士の空間を水素リッチガス通路として水素リッチガスマニホール ド 58に連通させる構成としている。

【0081】

図26および図27は、燃焼要素8と改質要素7と水素分離膜要素59とを積層した状態の斜視図である。改質要素7の改質触媒通路22等の各通路は相対的に高圧に設定されており、改質要素7の改質触媒通路22を通過する原料蒸気は、改質触媒による水蒸気改質により生成改質ガスに逐次改質され、生成改質ガス中の水素成分が水素透過膜54により選択分離されて前記圧力差により透過して、水素リッチガスとして前記水素リッチガス通路55を経由して水素リッチガスマニホール ド 58に導入されることになる。一方、水素分離膜54を通過できなかった残りの水素や改質反応で生成したメタンやCOは、図26中の矢印のように、改質排気ガスマニホール ド 16 Aに至り、上端エンドプレート4に設けた連結通路43を経由し、必要に応じて追加燃料噴射弁44から噴射された追加燃料と混合されて、分配マニホール ド 42に供給され、各主通路40で液状分がガス化される。各主通路40でガス化された混合ガスは、各分配溝41を経由して改質要素7の各供給通路23に至り、さらに各供給穴13を経由して燃焼要素8の酸化触媒通路11に夫々供給される。酸化触媒通路11では第3実施形態と同様にして燃焼反応され、改質要素7の改質触媒通路22および原料蒸発通路21を加熱するようにしている。

【0082】

前記水素分離膜要素59は、両面に水素分離膜54を備えるものであるため、通常は図27に示す積層状態で使用される。即ち、水素分離膜要素59の両側に改質要素7を対称に配置し、対称となった改質要素7の外側に燃焼要素8を対称に配置するようにしている。この対称配置の燃焼要素8には隔壁プレート6で蓋を形成して改質要素7、水素分離膜要素59の順に積層して構成する。この場合の隔壁プレート6は、積層される改質要素7、燃焼要素8および水素分離膜要素59と同様の配置において、各マニホール ドが形成されると共に、燃焼要素8の主通路40と改質要素7の供給通路23とが交差する部分に分配溝41を形成し、改質要素7の供給通路23と燃焼要素8の酸化触媒通路11とが交差する部分に夫々供給孔13を形成している。

【0083】

そして、これらを所定数だけ積層した状態で、下端エンドプレート2と上端エンドプレート4で挟み、図示しないスタッドボルトで積層方向に締付け、図28に示すように、開放している原料蒸気マニホール ド 15および改質排気ガスマニホール ド 16 Aをカバー28、29で密閉すると、図29に示す燃料改質反応器1を構成することができる。前記上端エンドプレート4には、2個の水素リッチガスマニホール ド 58に夫々連通させて水素リッチガス出口60が配置され、第3実施形態と同様に、連結通路43には追加燃料噴射弁44が配置されており、改質排気ガスマニホール ド 29のカバーには、原料マニホール ド 14に連通させた原料入口25を形成している。

【0084】

本実施形態においては、第1実施形態における効果（ア）、（イ）、（エ）～（カ）、（キ）～（コ）、（サ）および第3実施形態における効果（ス）～（ソ）に加えて、第4実施形態における効果（タ）、（チ）を同様に奏することができる。

【0085】

即ち、（タ）燃料改質反応器1は、改質要素7に隣接させて水素分離膜54および水素リッチガス出口60に連なる水素リッチガス通路要素55を備え、改質要素7で生成した生成水素を水素分離膜54を透過させて水素リッチガス通路55に導入するため、改質要素7で生成した水素は水素分離膜54により高純度化され水素リッチガスとなり、水素リ

ッチガス出口60から燃料電池などへ供給することができる。一方、水素分離膜54を通過できなかった残りの水素や改質反応で生成したメタンやCOは、必要に応じて追加燃料と混合され、改質排気ガスとして、実施形態3と同様に燃焼要素8で燃焼反応し、改質要素7および原料蒸発通路21を加熱するため、無駄とならない。

【0086】

(チ) 燃料改質反応器1は、前記水素リッチガス通路55の両側に隣接して水素分離膜54を積層し、さらに両側に改質要素7および燃焼要素8をこの順に積層して備えるため、改質要素7での改質が水蒸気改質のような吸熱反応の場合、燃焼要素8の熱を改質触媒に伝え、温度が下がった状態の生成改質ガスが水素分離膜54に到達するため、水素分離膜54の温度を燃焼要素8の燃焼温度より低く保ち、水素分離膜54の熱耐久性を向上させることができる。しかも、水素分離膜54の原料蒸気マニホールド15および改質排気ガスマニホールド16Aを、水素分離膜54および水素リッチガス通路55に接しない構造にしていることにより、改質要素7の供給通路23による燃焼要素8へのガス供給経路を確保しつつ各要素を積層することが可能となる。

【図面の簡単な説明】

【0087】

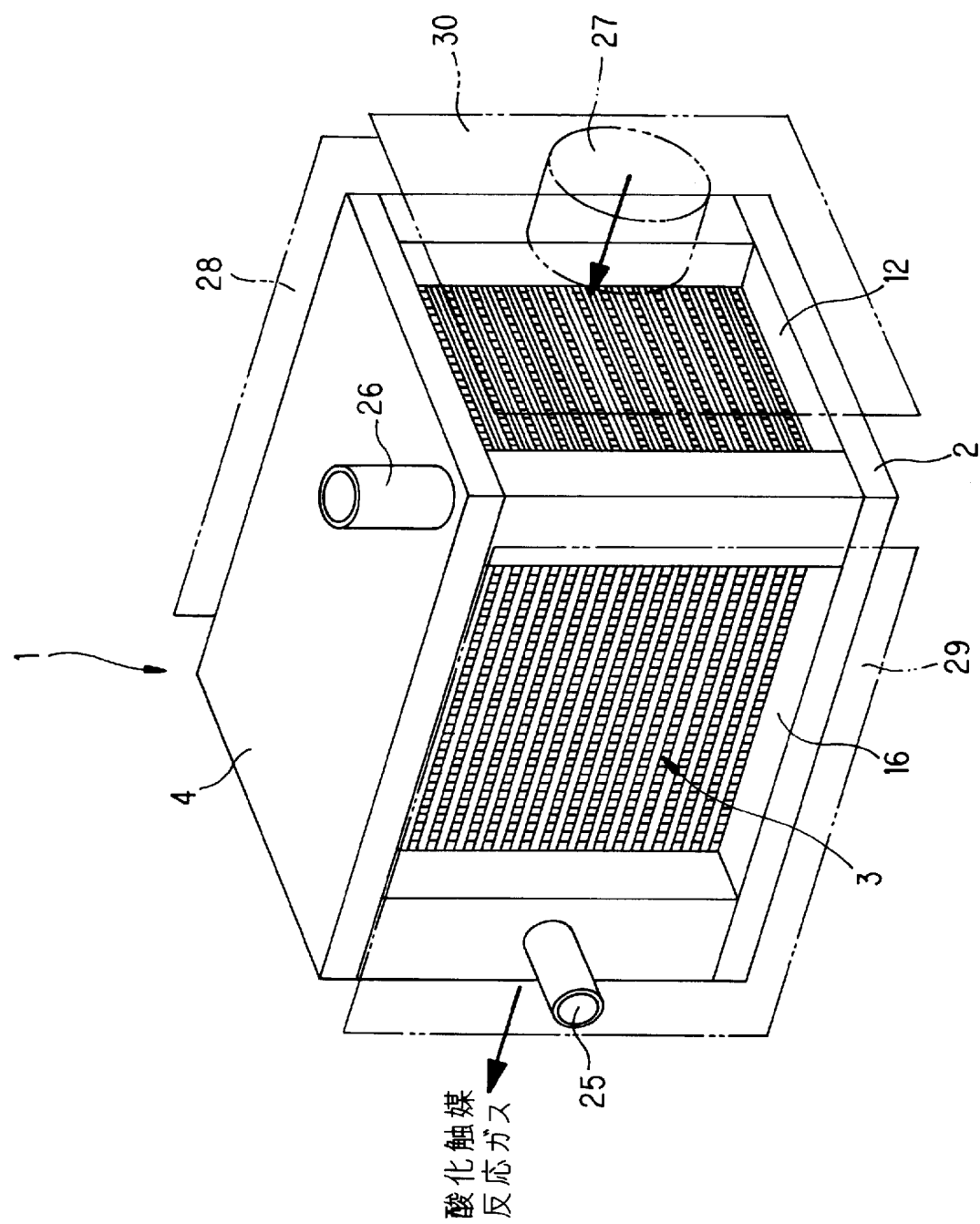
- 【図1】 本発明の一実施形態を示す燃料改質反応器の全体斜視図。
- 【図2】 同じく積層される単燃料改質ユニットの部分斜視図。
- 【図3】 同じく単燃料改質ユニットを構成する燃焼要素の平面図。
- 【図4】 同じく単燃料改質ユニットを構成する改質要素の平面図。
- 【図5】 本発明の第2実施形態を示す燃料改質反応器の改質要素を主体として各要素の通路との位置関係を示す透視図。
- 【図6】 同じく図5に示した単燃料改質ユニットの部分斜視図。
- 【図7】 同じく組立状態の燃料改質反応器の全体斜視図。
- 【図8】 同じく供給空気の加熱手段の斜視図。
- 【図9】 同じく加熱手段を含む組立状態の燃料改質反応器の全体斜視図。
- 【図10】 本発明の第3実施形態を示す燃料改質反応器の燃焼要素の平面図。
- 【図11】 同じく改質要素の平面図。
- 【図12】 同じく単燃料改質ユニットの部分斜視図。
- 【図13】 同じく組立状態の燃料改質反応器の全体斜視図。
- 【図14】 本発明の第4実施形態を示す燃料改質反応器の燃焼要素の平面図。
- 【図15】 同じく改質要素の平面図。
- 【図16】 同じく水素分離膜要素の平面図。
- 【図17】 同じく水素分離膜要素の第1例の断面図。
- 【図18】 同じく水素分離膜要素の第2例の断面図。
- 【図19】 同じく積層状態を示す斜視図。
- 【図20】 同じく別の積層状態を示す斜視図。
- 【図21】 同じく改質要素を主体として各要素の通路との位置関係を示す透視図。
- 【図22】 同じく組立状態の燃料改質反応器の全体斜視図。
- 【図23】 本発明の第5実施形態を示す燃料改質反応器の燃焼要素の平面図。
- 【図24】 同じく改質要素の平面図。
- 【図25】 同じく水素分離膜要素の平面図。
- 【図26】 同じく積層状態を示す斜視図。
- 【図27】 同じく別の積層状態を示す斜視図。
- 【図28】 同じく改質要素を主体として各要素の通路との位置関係を示す透視図。
- 【図29】 同じく組立状態の燃料改質反応器の全体斜視図。

【符号の説明】

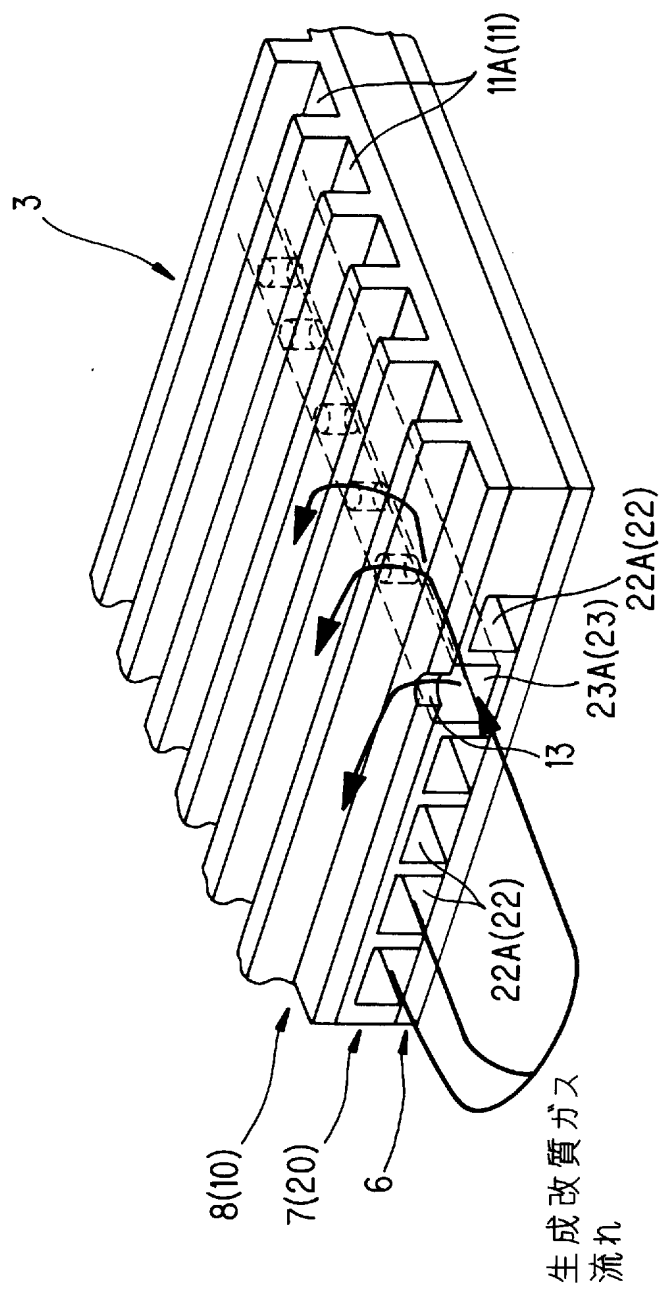
【0088】

- 1 燃料改質反応器
- 2、4 エンドプレート

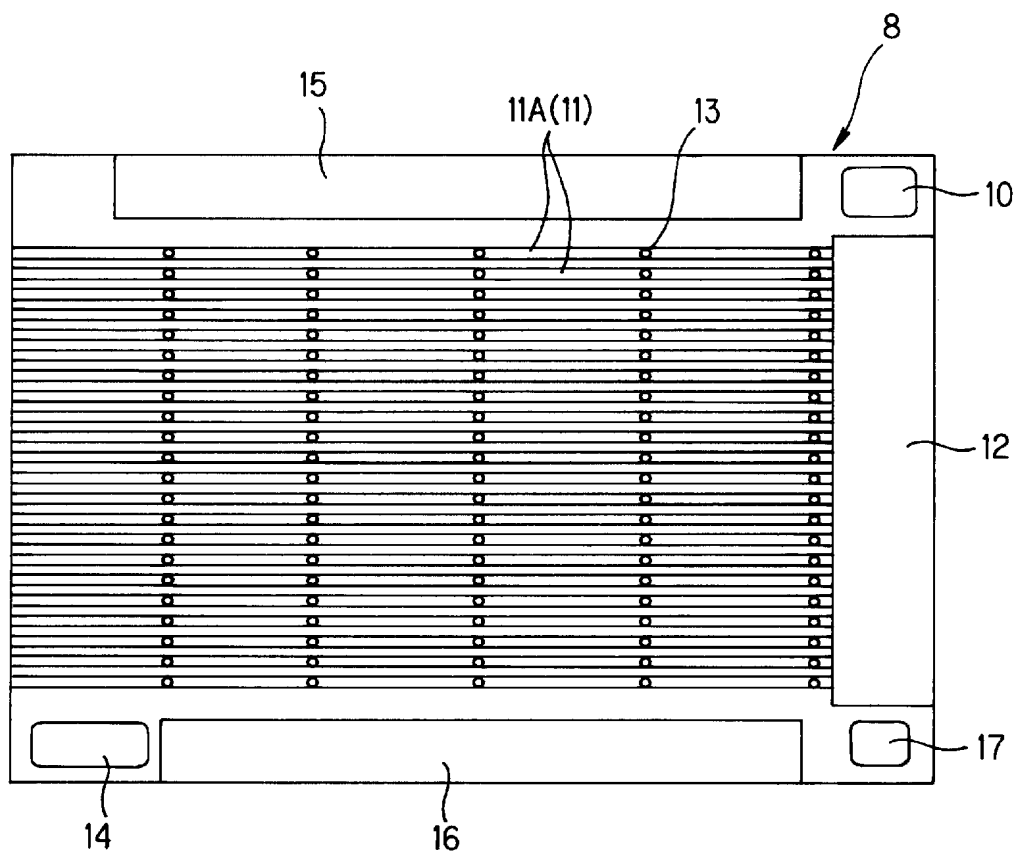
- 3 単燃料改質ユニット
- 6 隔壁プレート
- 7 改質要素
- 8 燃焼要素
- 10、20 プレート本体
- 11 酸化触媒通路（燃焼ガス通路）
- 12 空気マニホールド
- 13 供給孔
- 14 原料マニホールド
- 15 原料蒸気マニホールド
- 16 生成改質ガスマニホールド
- 17 改質ガスマニホールド
- 21 原料蒸発通路
- 22 改質触媒通路
- 23 供給通路
- 25 原料入口
- 26 改質ガス出口
- 27 空気入口



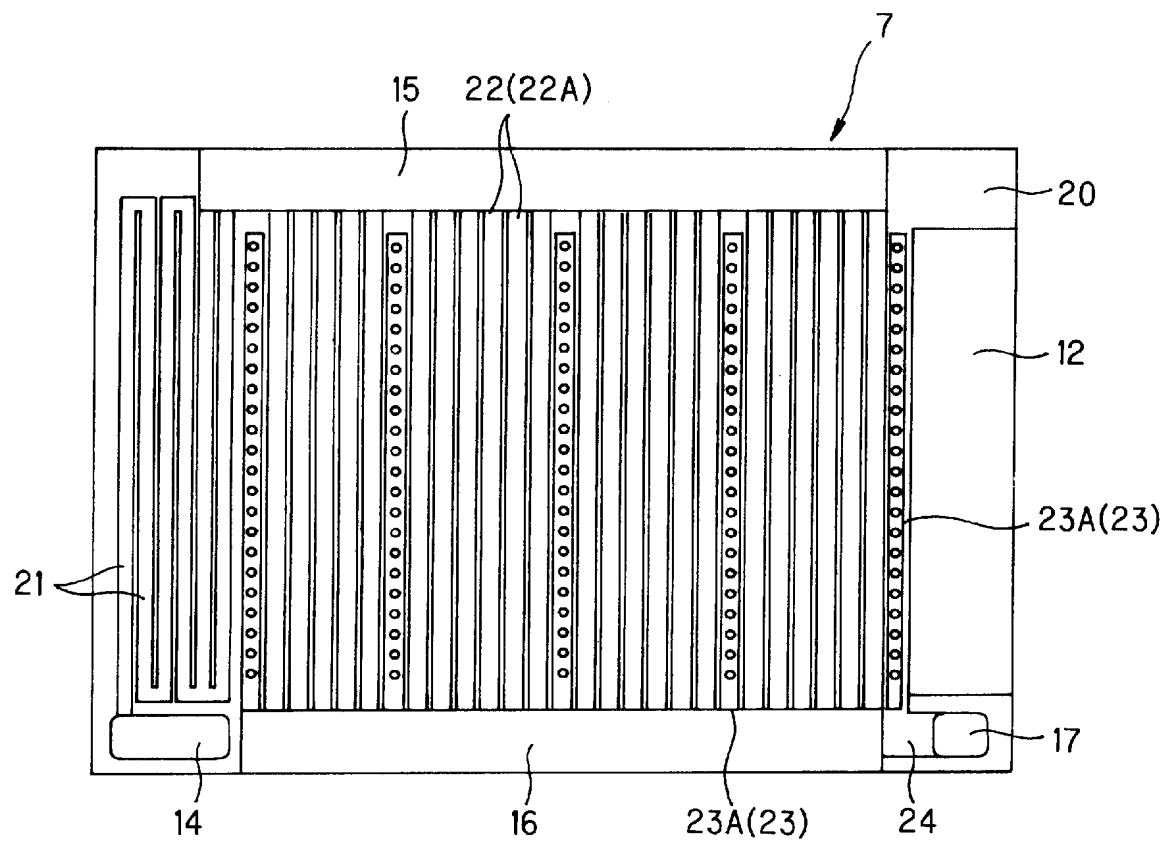
【図 2】

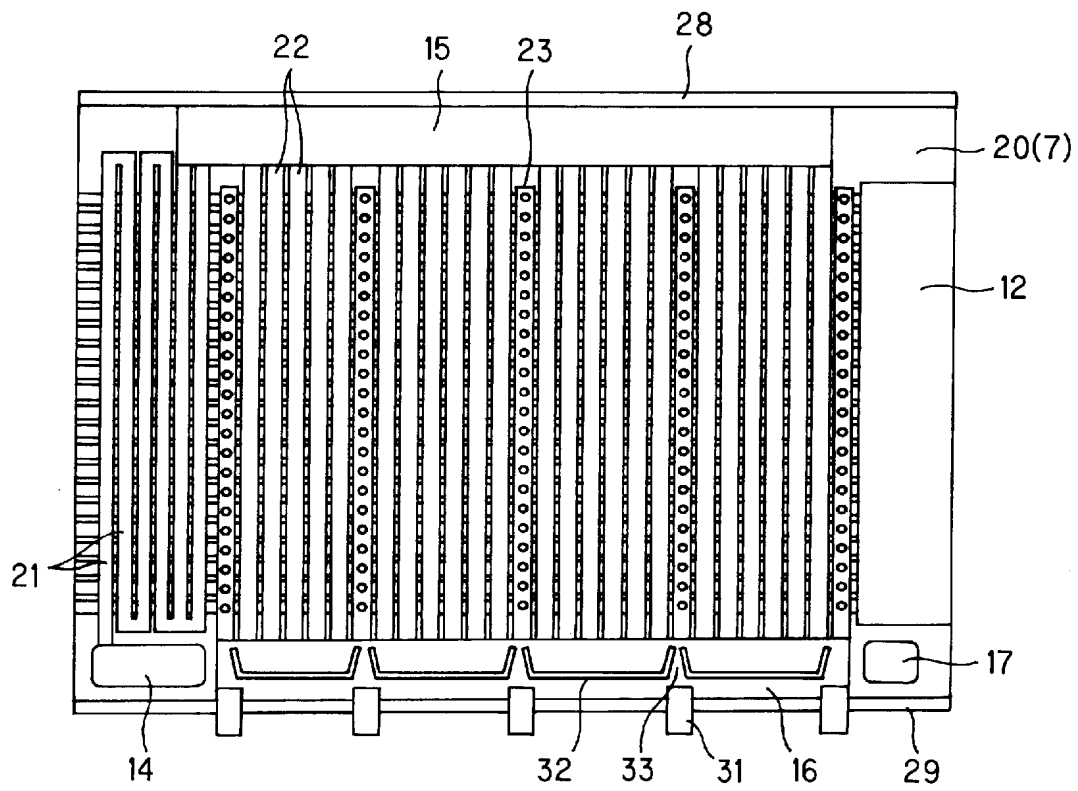


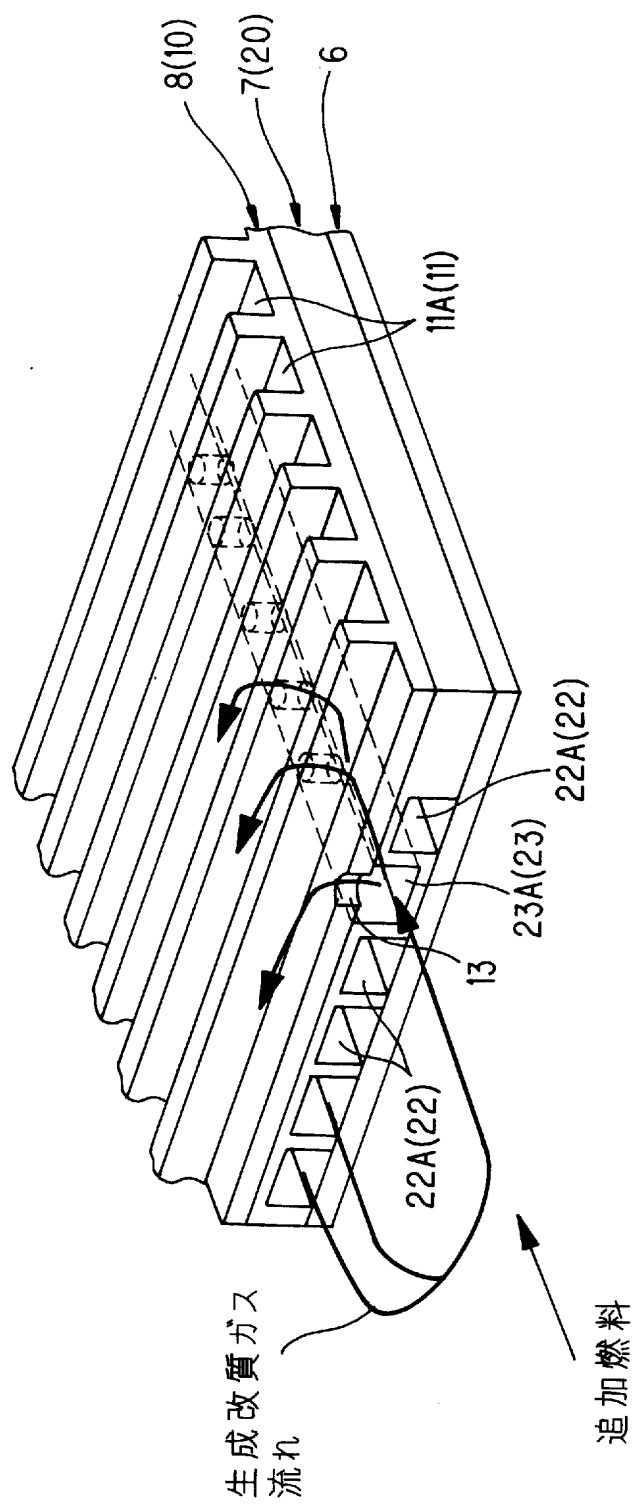
【図 3】



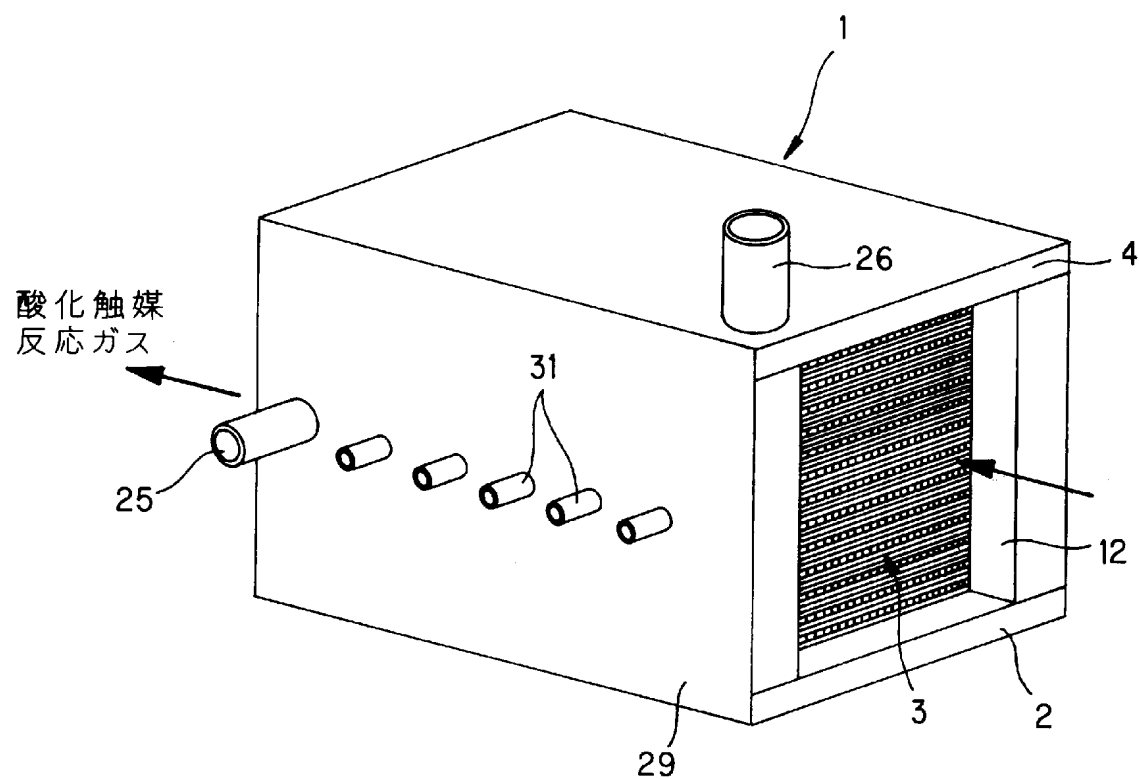
【図 4】



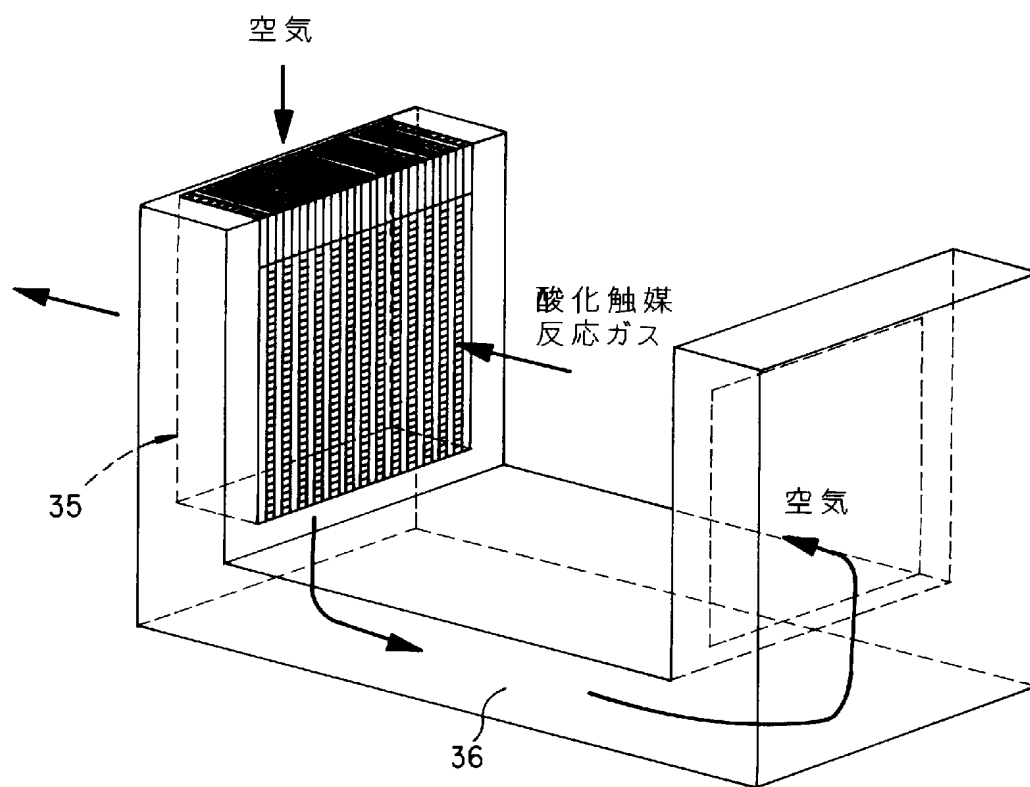


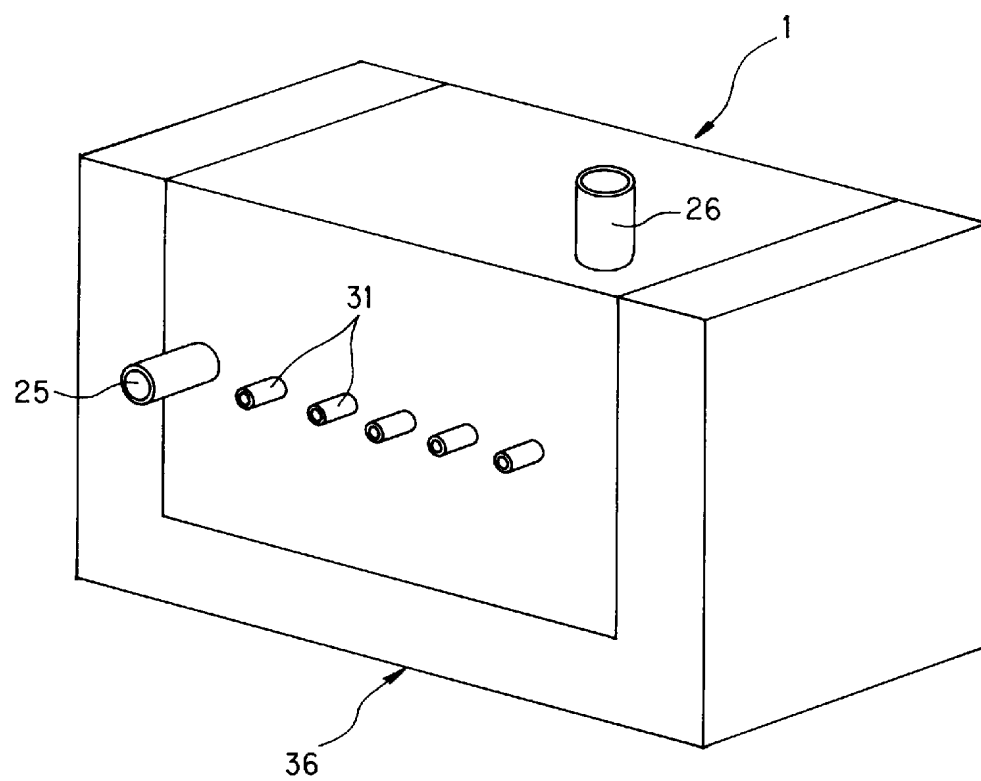


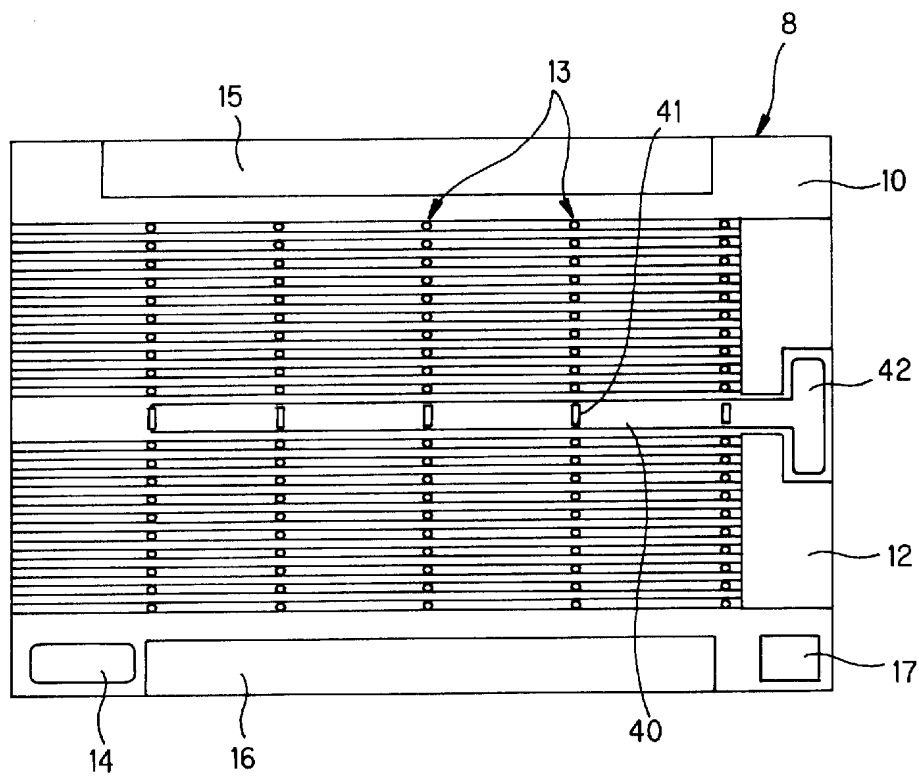
【図 7】

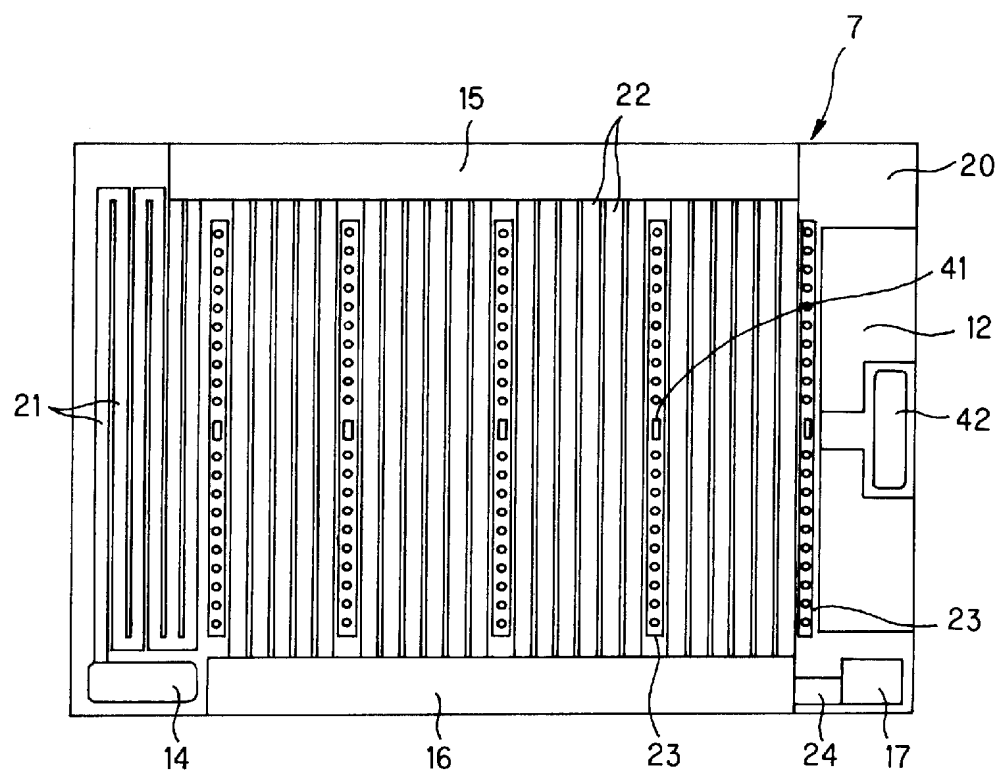


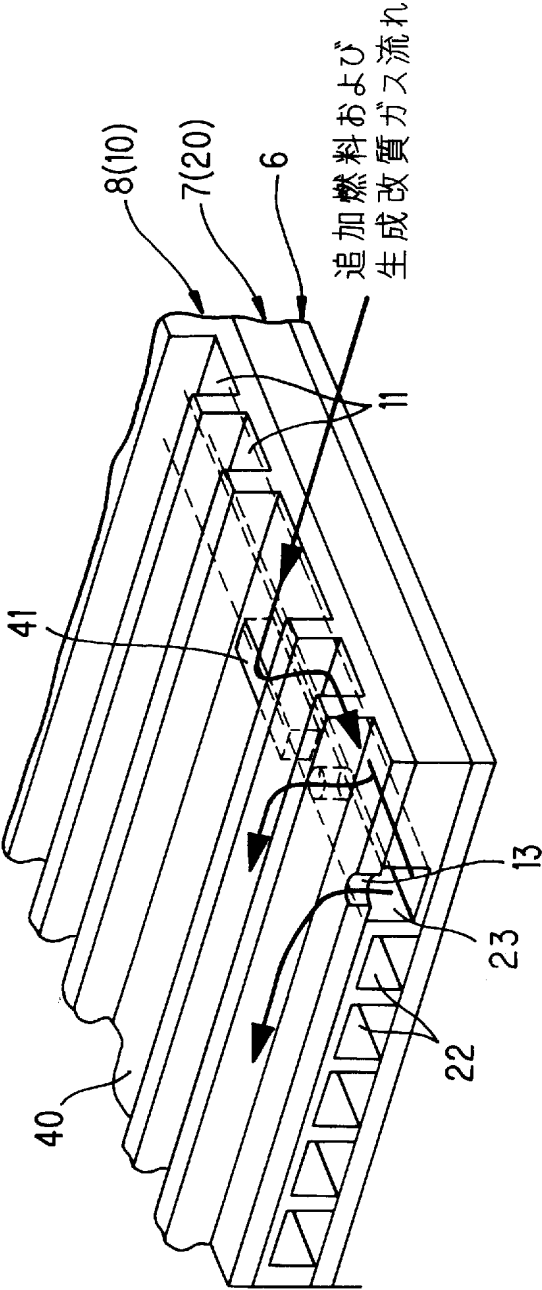
【図 8】



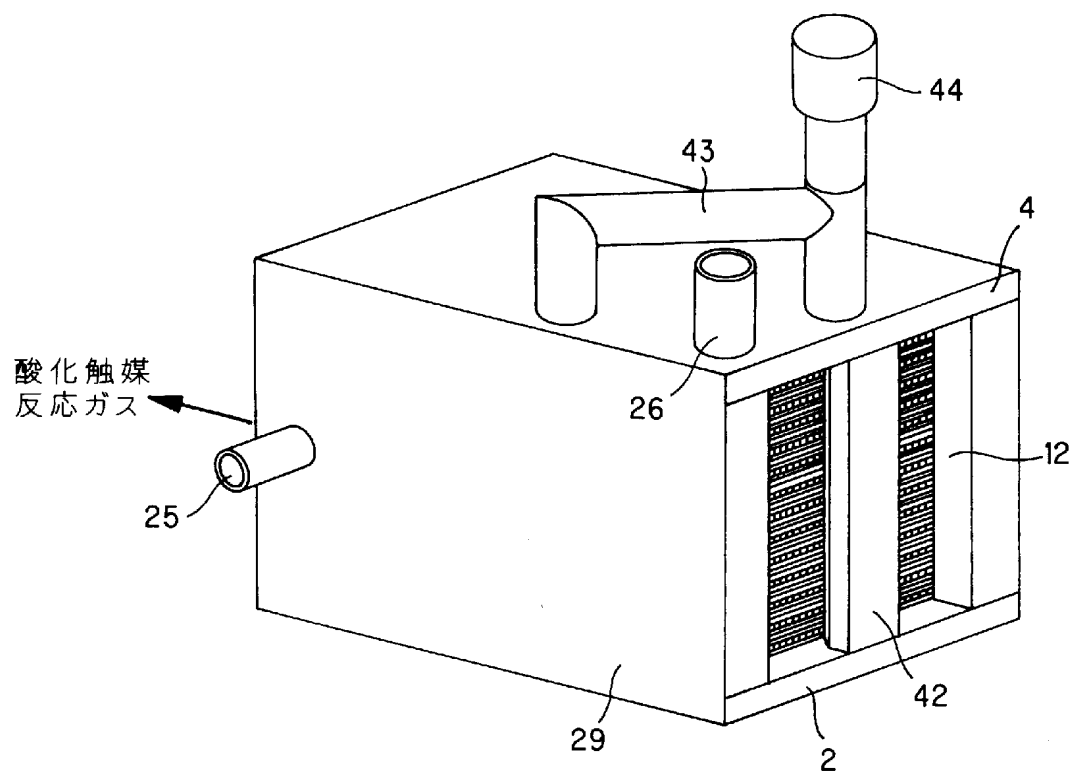


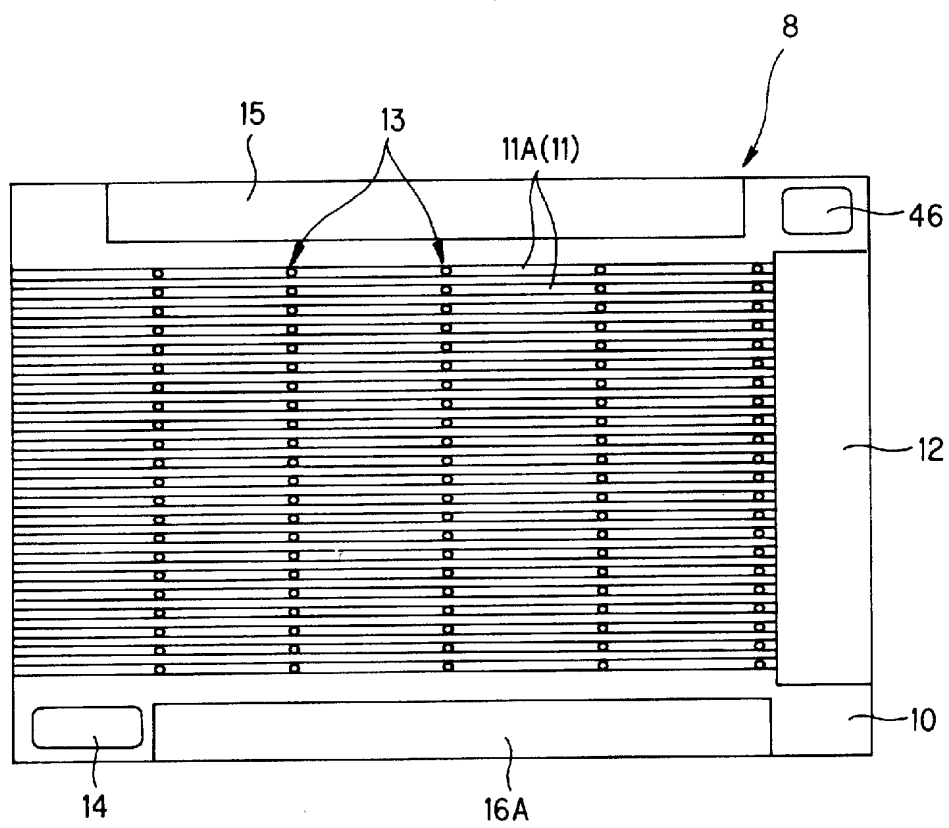


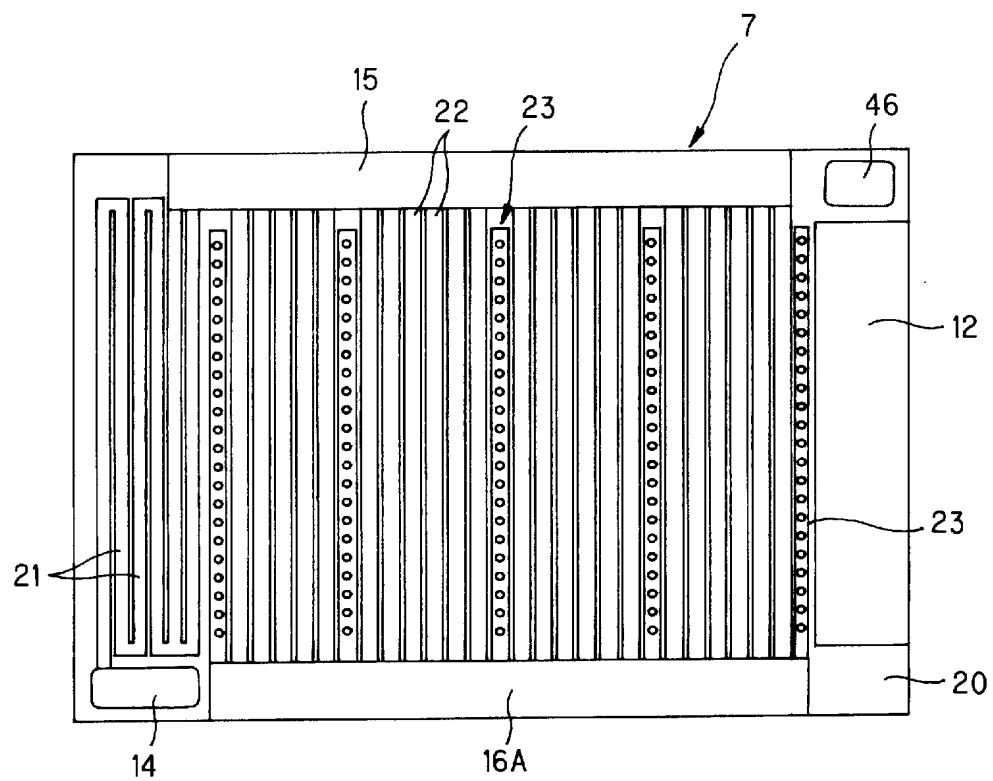




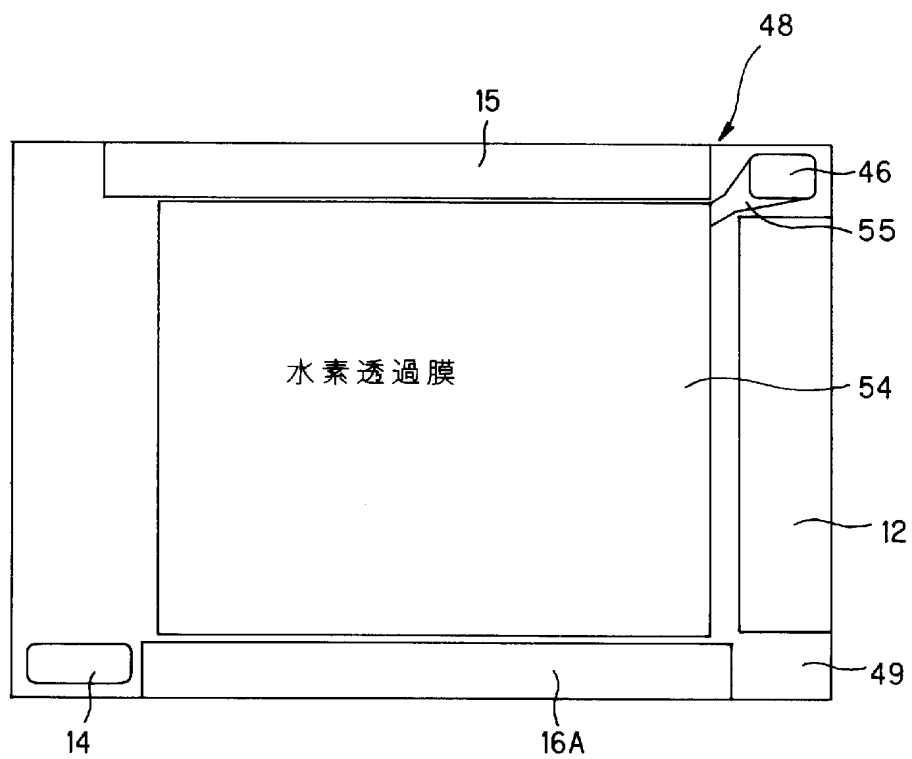
【図 13】

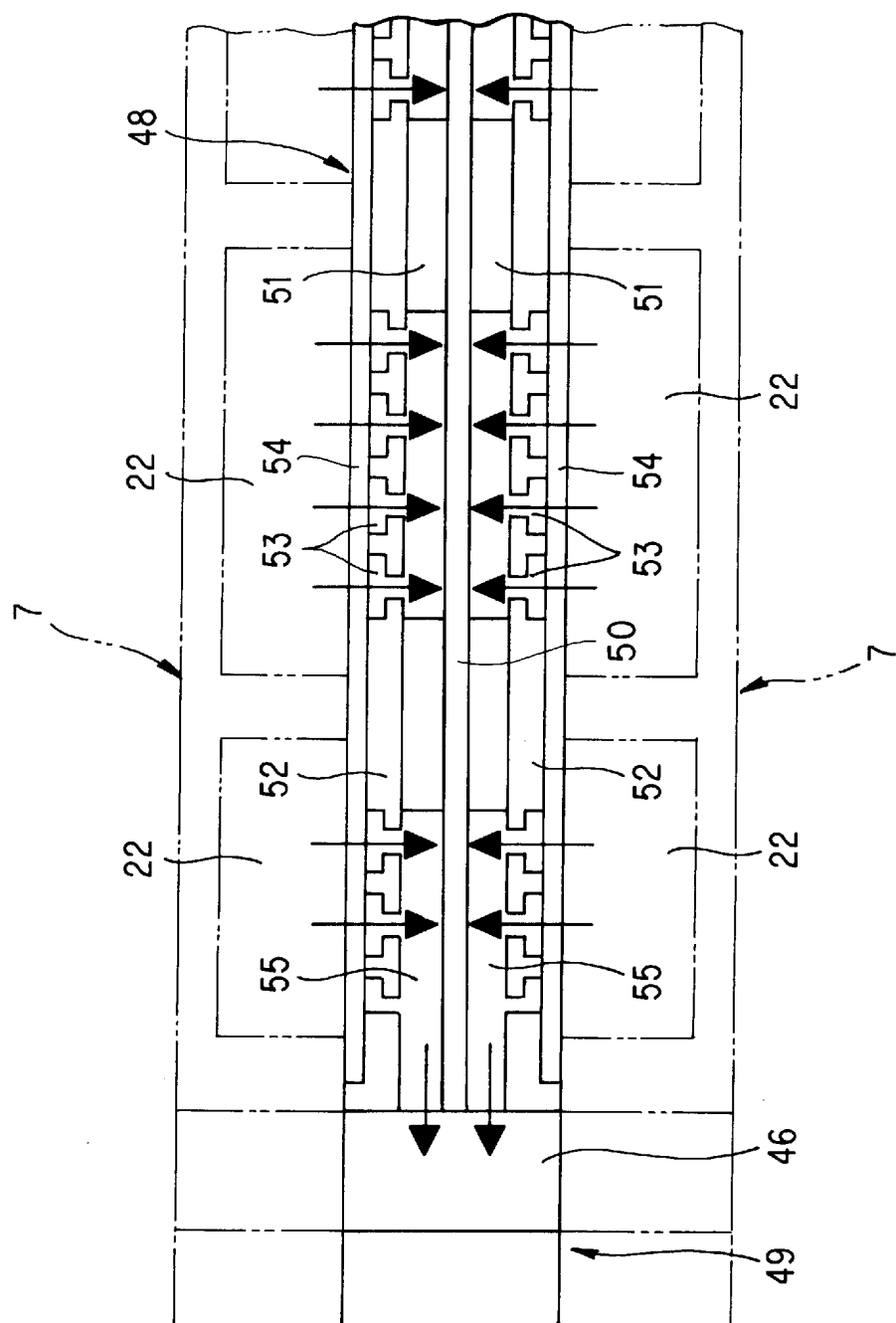


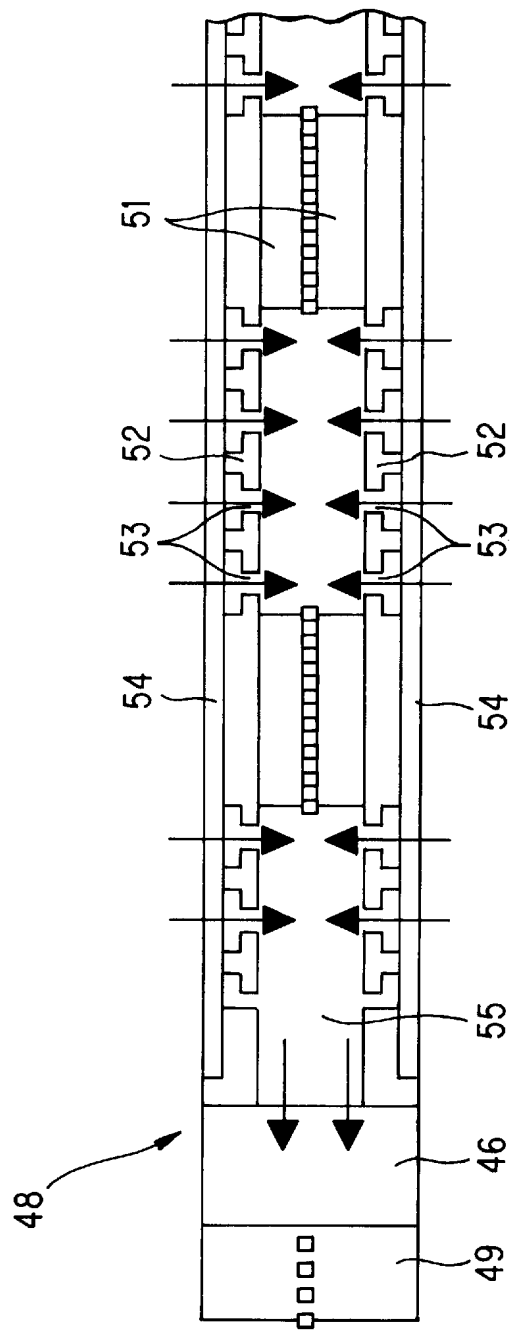


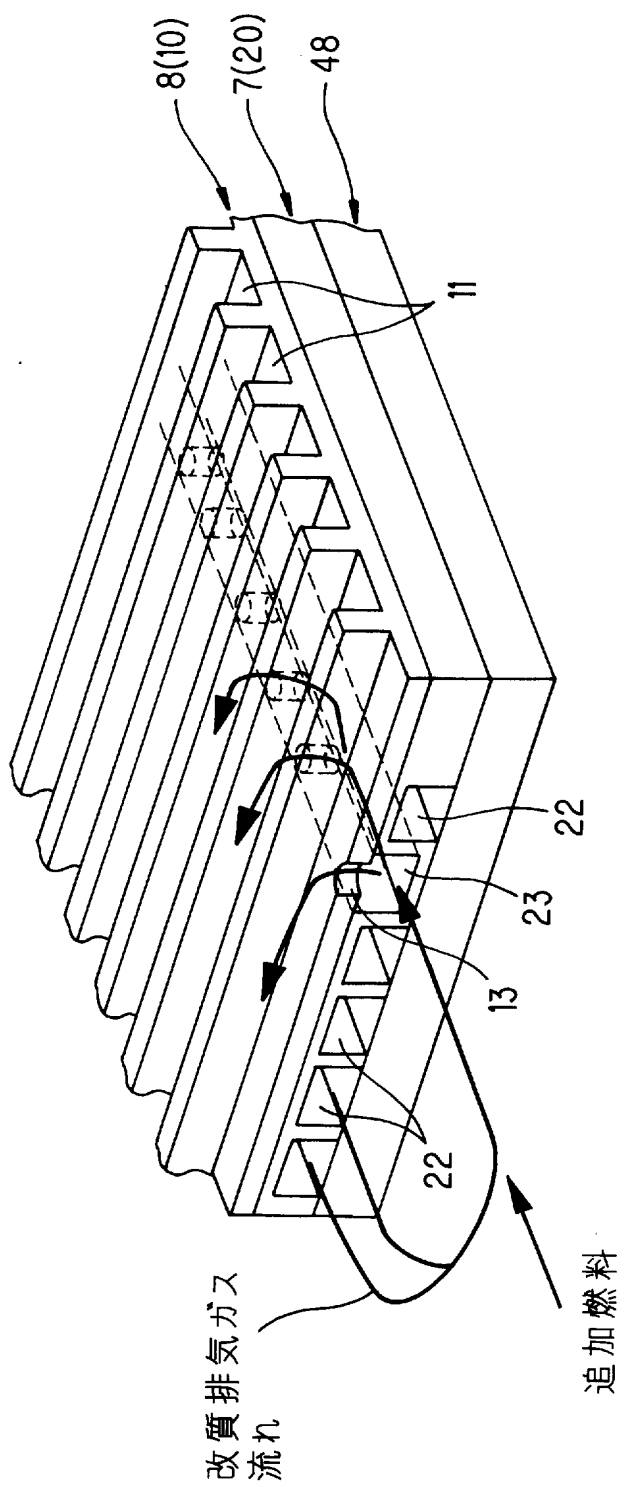


【図 16】

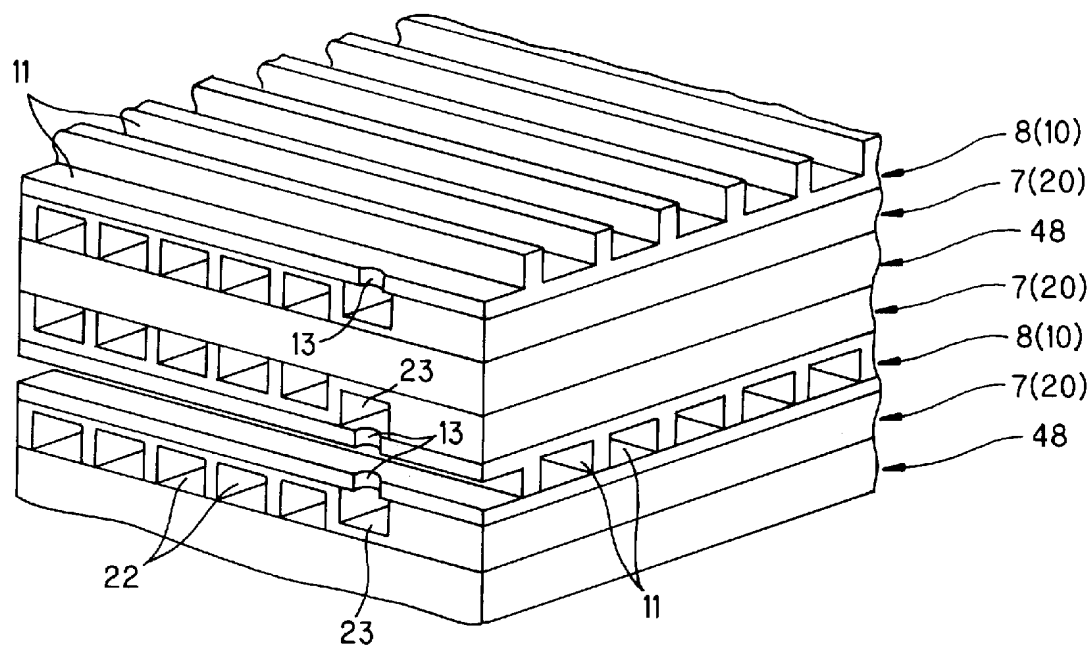




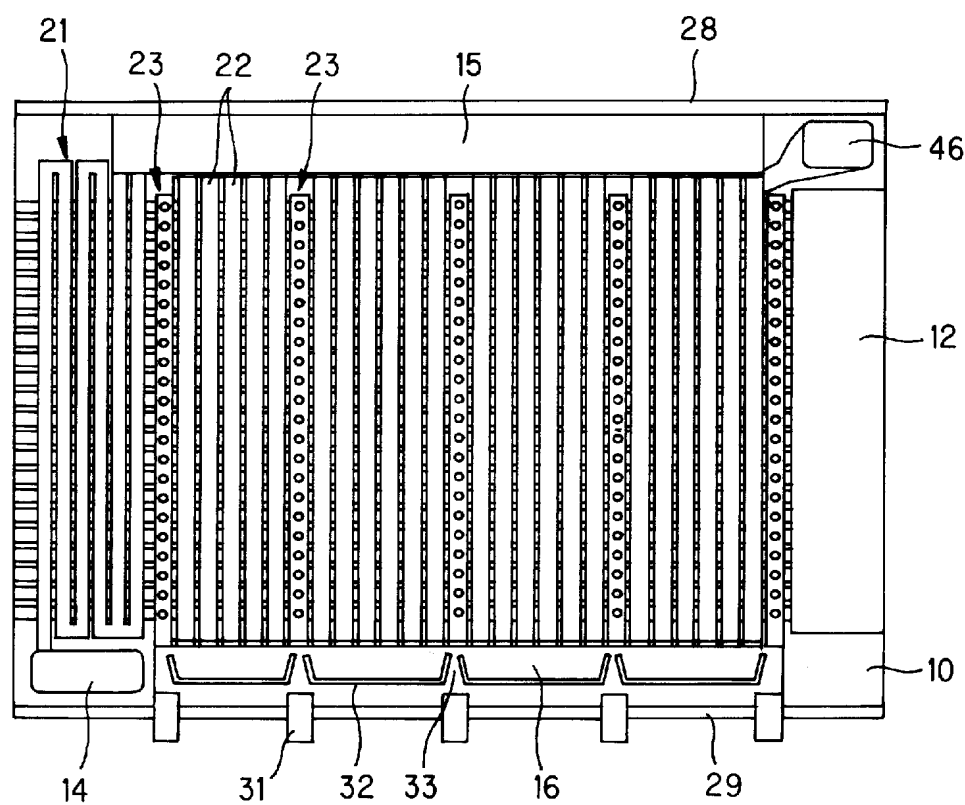




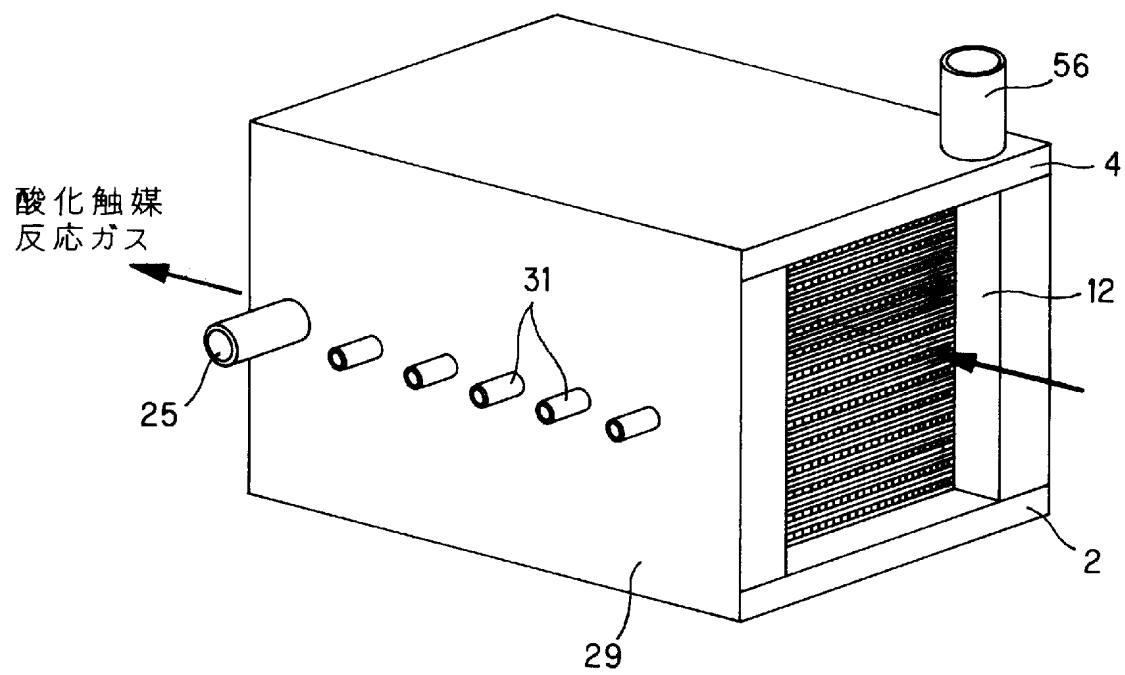
【図 20】



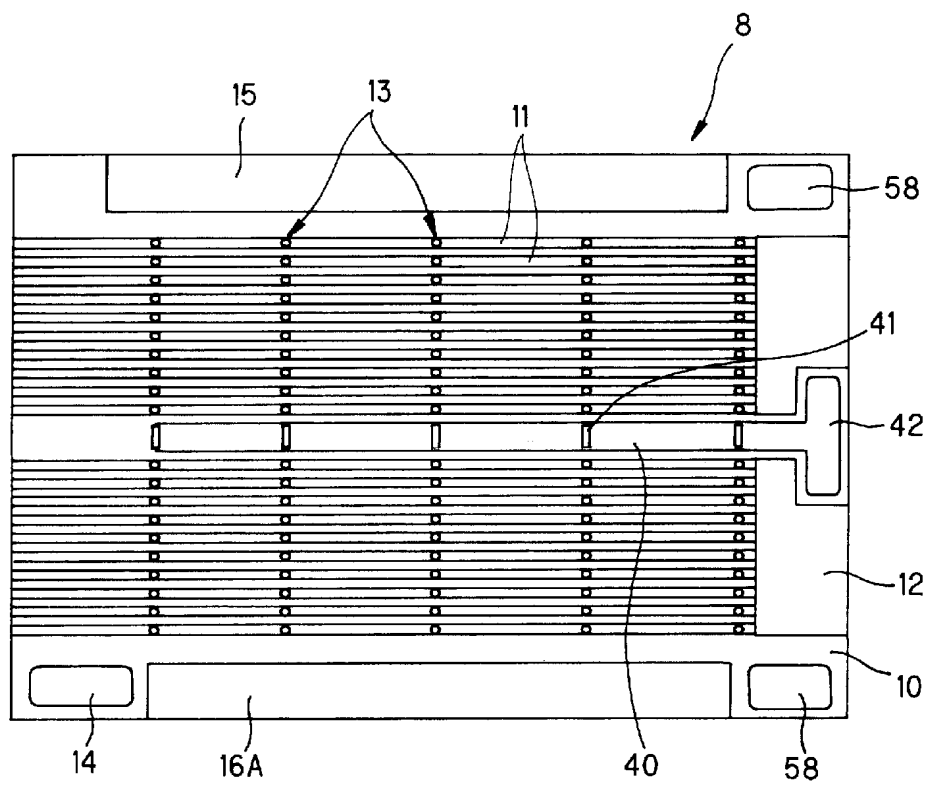
【図 2 1】



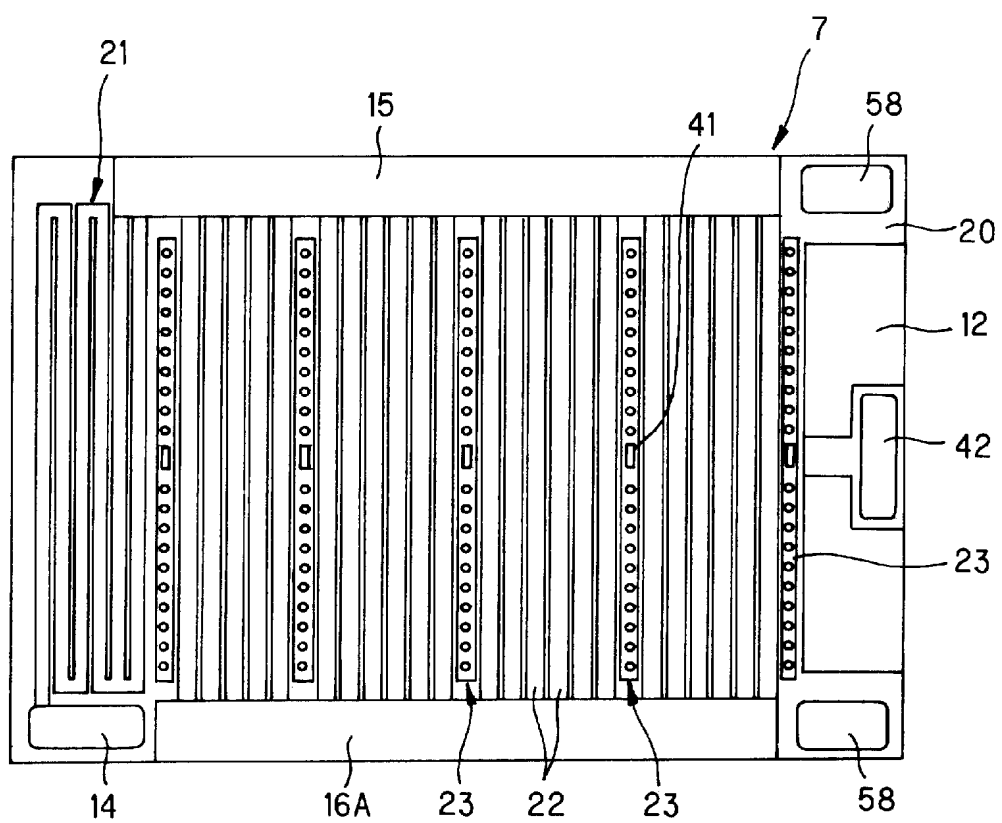
【図 2 2】



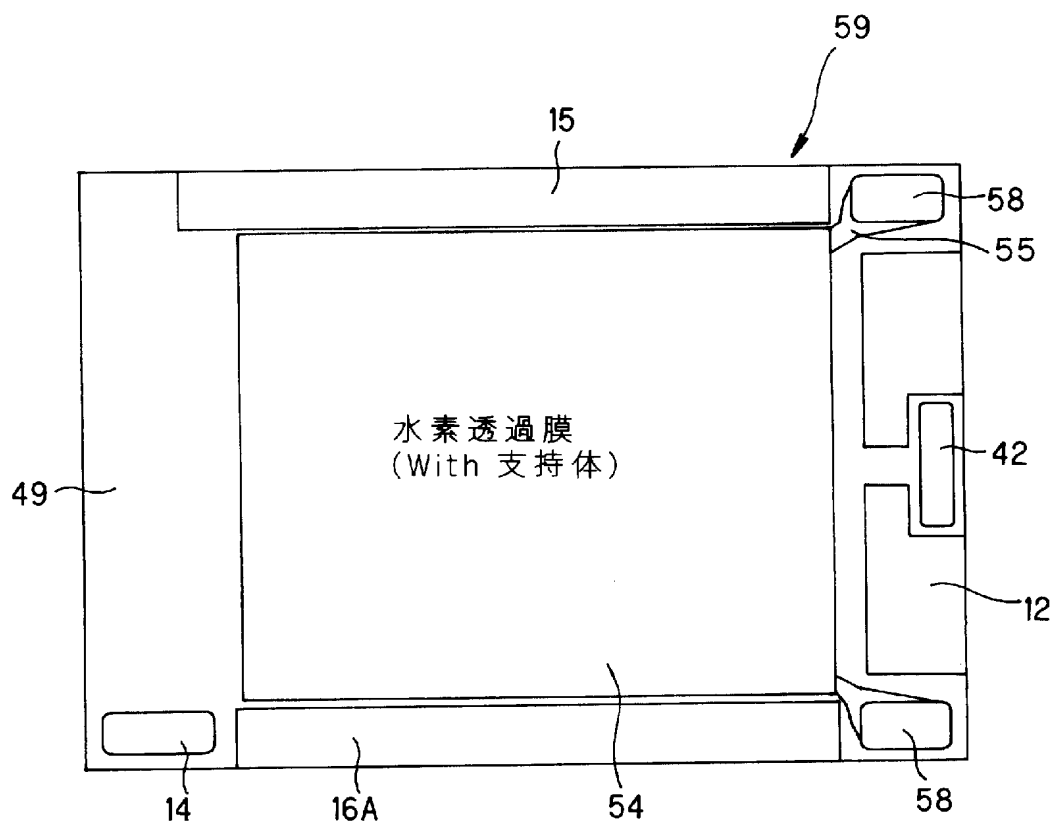
【図 23】



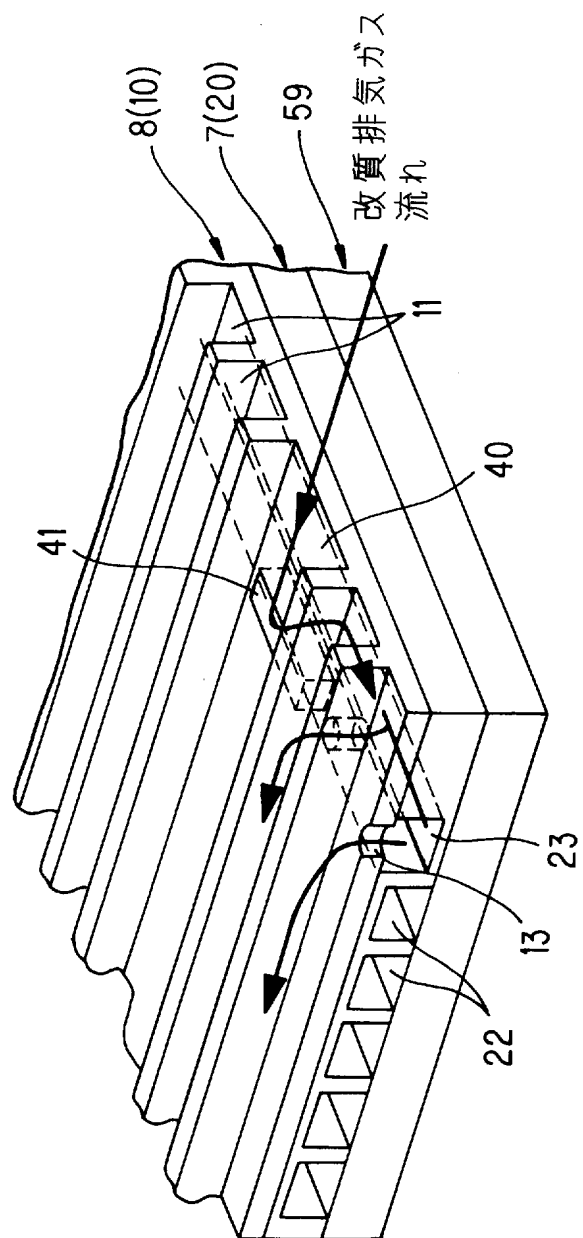
【図 24】



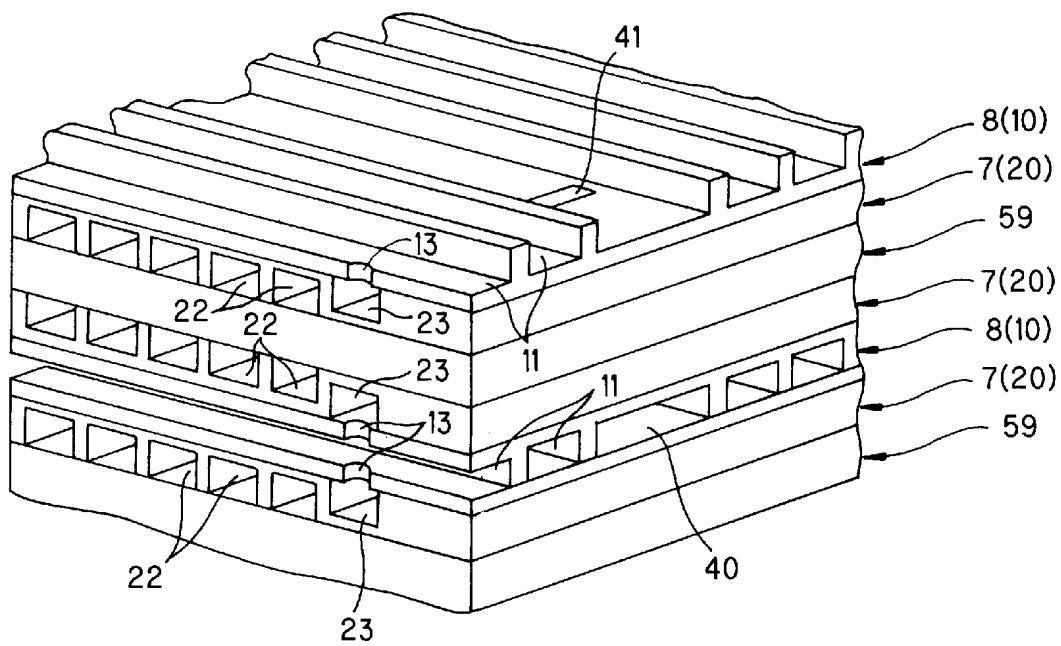
【図 25】



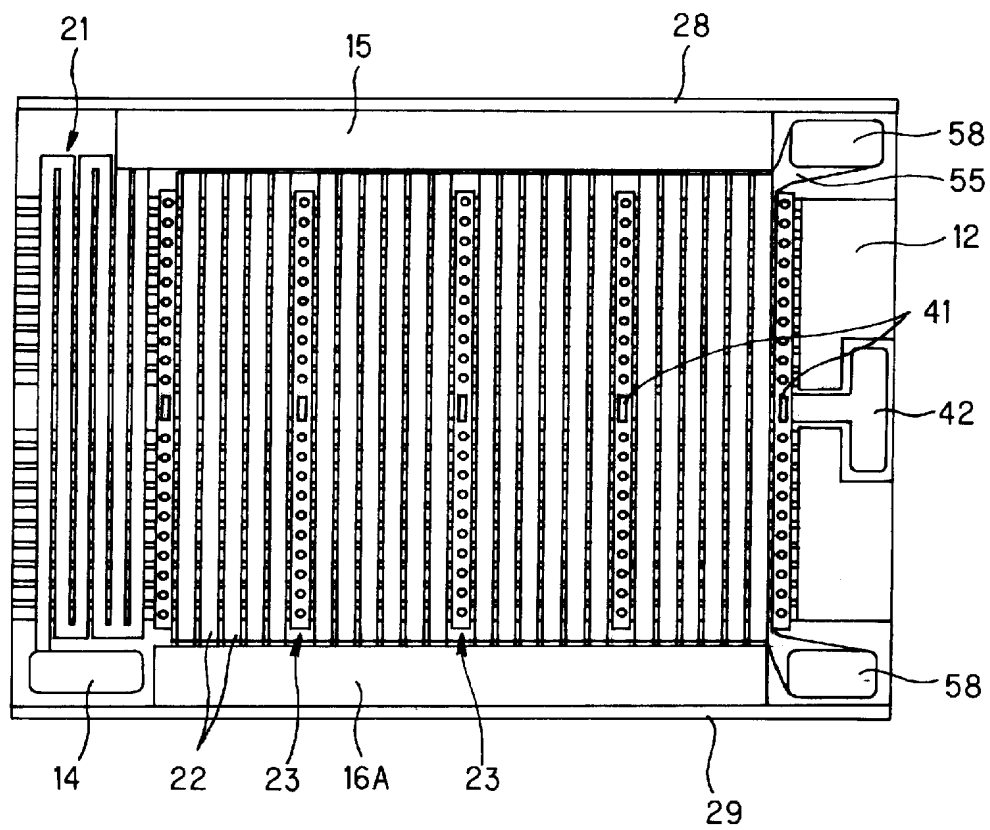
【図 26】



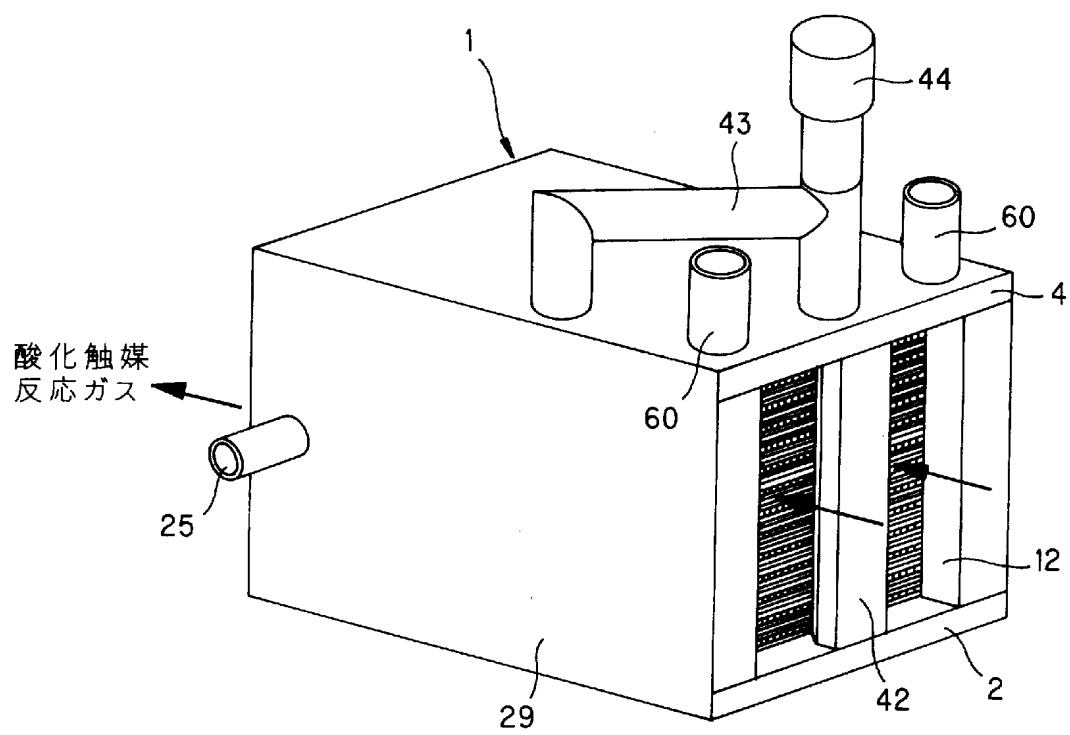
【図 27】



【図 28】



【図 29】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 改質要素の温度分布制御が可能な多段燃焼要素を備える燃料改質反応器を提供する。

【解決手段】 原料を改質して改質ガスを生成する改質触媒を担持させた改質触媒通路 2 2 を有する改質要素 7 と、供給空気により供給燃料を燃焼させ、燃焼ガスの熱により前記改質要素 7 を加熱する燃焼ガス通路（酸化触媒通路 1 1）を有する燃焼要素 8 とを積層し、前記燃料は改質要素 7 で生成した生成改質ガスの少なくとも一部を、燃焼要素 8 の燃焼ガスの流れ方向に予め設定した所定間隔をあけて前記燃焼ガス通路 1 1 の複数の部位に夫々供給し、その下流部位で供給した生成改質ガスを燃焼させるようにした。

【選択図】 図 2

【書類名】 手続補正書（方式）
【提出日】 平成16年 4月21日
【あて先】 特許庁長官殿
【事件の表示】
 【出願番号】 特願2004-110166
【補正をする者】
 【識別番号】 302057052
 【氏名又は名称】 ルノー エス．ア．エス．ソシエテ パ アクション サンプリ
 フェ
【代理人】
 【識別番号】 100075513
 【弁理士】
 【氏名又は名称】 後藤 政喜
【手続補正1】
 【補正対象書類名】 特許願
 【補正対象項目名】 提出物件の目録
 【補正方法】 追加
 【補正の内容】
 【提出物件の目録】
 【物件名】 委任状及びその訳文 1

【添付書類】



委任状

私／我々こと（ルノー エス. ア. エス. ソシエテ パ アクション サンプリフェ）（住所：フランス国エフー 9 2 1 0 0 プーローニュ ビヤンクール）は、ここに、識別番号 100075513（弁理士）後藤 政喜 氏と、識別番号100084537（弁理士）松田 嘉夫 氏をを以て 代理人として下記事項を委任します。

1. 特願 2004-110166 に関する一切の手続き
2. 日本国特許法第8条、同実用新案法第2条の5、同意匠法第68条及び同商標法第77条に従い、前記の特許、実用新案登録、意匠登録もしくは商標登録（防護標章登録）に関連するすべての手続を実施するとともに、特許もしくは登録の認可後に前記の法及び規則に基づき必要とされるすべての手続を実行すること；
3. 前記の特許、実用新案登録、意匠登録もしくは商標登録（防護標章登録）の認可に対する異議申立てに対し、必要なすべての手続をとること；
4. 前記の特許もしくは登録に由来する特許権、実用新案権、意匠権、商標権もしくは防護標章登録に基づく権利につき、必要なすべての手続をとり、あるいは前記の権利を放棄すること；
5. 特許無効審判請求、特許権の存続期間延長登録、意匠登録、商標登録、防護標章登録もしくは前記の特許ないし登録に関わる再分類登録に関連した必要なすべての手続をとること；
6. 前記の特許もしくは実用新案登録に由来する特許権もしくは実用新案権に関わる訂正審判を請求すること；
7. 前記の商標登録に関わる商標登録取消審判請求につき、必要なすべての手続をとること；
8. 前記の商標登録に関わる再分類登録につき、必要なすべての手続をとること；
9. 以上の1～8項に明記された手続に関連する請求、請願もしくは申立てを取り下げること；
10. 以上の1～9項に関して、行政不服審査法の諸規定に従って各種の手続をとること；
11. 以上の1～10項に明記されたあらゆる行為を実行せしめるために、一ないし複代理人の選任及び解任を行うこと。

2004年4月2日

委任者の署名：_____

POWER OF ATTORNEY

I/We, RENAULT s.a.s. société par actions simplifiée
 of F-92100 BOULOGNE-BILLANCOURT FRANCE
 do hereby appoint ID No.100075513 (Patent Attorney) **Masaki Gotoh** and ID
 No.100084537 (Patent Attorney) **Yoshio Matsuda** to be my/our lawful attorneys and
 carry out any and all of the following acts, namely:

1. To take all the necessary procedures concerning Japanese Patent Application
No.2004-110166

2. To exercise all procedures concerning the aforementioned patent(s), utility
 model registration(s), design registration(s) or trademark (defensive mark)
 registration(s) pursuant to the provisions of Art. 8 of the Patent Law, Art. 2^{quinties} of
 the Utility Model Law, Art. 68 of the Design Law and Art. 77 of the Trademark Law of
 Japan as well as to perform all necessary acts under the laws and rules after grant of
 patent or registration,

3. To take all the necessary procedures concerning a opposition to the grant of
 the aforementioned patent(s), utility model registration(s), design registration(s) or
 trademark (defensive mark) registration(s),

4. To take all the necessary procedures concerning a patent right, utility model
 right, design right, trademark right or right based on defensive mark registration
 deriving from the aforementioned patent(s) or registration(s) or abandon the said rights,

5. To take all the necessary procedures concerning a demand for trial for
 invalidation of a patent, registration of an extension of the term of a patent right, design
 registration, trademark registration, defensive mark registration or reclassification
 registration regarding the aforementioned patent(s) or registration(s),

6. To demand a trial for correction regarding a patent right or utility model
 right deriving from the aforementioned patent(s) or utility model registration(s),

7. To take all the necessary procedures concerning a demand for trial for
 cancellation of a trademark registration regarding the aforementioned trademark
 registration(s),

8. To take all the necessary procedures concerning a reclassification registration
 regarding the aforementioned trademark registration(s),

9. To withdraw a demand, request or motion concerning the aforementioned
 procedures specified in 1-8,

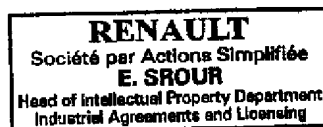
10. To take various procedures in accordance with the provisions of
 Administrative Complaints Examination Law with regard to the aforementioned in 1
 ~9; and

11. To appoint or dismiss (a) sub-agent(s) to perform any and all acts specified in
 1-10.

Dated this 2 day of April 2004.

By : _____

Elie SROUR



(NO LEGALIZATION REQUIRED)

REMARKS: When the applicant is a corporation or a body corporate, please have the name of its representative
 typewritten just below the signature column.

出願人履歴

0 0 0 0 0 3 9 9 7

19900831

新規登録

5 9 1 0 0 6 6 6 7

神奈川県横浜市神奈川区宝町 2 番地

日産自動車株式会社

3 0 2 0 5 7 0 5 2

20020930

新規登録

5 0 1 2 8 9 6 2 5

フランス国 エフー 9 2 1 0 0 ブーローニュ ビヤンクール
ルノー エス．ア．エス．ソシエテ パ アクション サンブリ
フェ